


## 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<b>(51) 国際特許分類6</b> <b>G02B 5/02, 5/30, G02F 1/1335, C08J 9/00, B32B 17/10, 7/02</b>	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO98/05984</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 1998年2月12日(12.02.98)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP97/02700 <b>(22) 国際出願日</b> 1997年8月4日(04.08.97)  <b>(30) 優先権データ</b> 特願平8/220748 1996年8月5日(05.08.96) JP 特願平8/352574 1996年12月16日(16.12.96) JP  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 帝人株式会社(TEIJIN LIMITED)[JP/JP] 〒541 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 Osaka, (JP) <b>(72) 発明者 ; および</b> <b>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ)</b> 内山昭彦(UCHIYAMA, Akihiko)[JP/JP] 谷田部俊明(YATABE, Toshiaki)[JP/JP] 〒191 東京都日野市旭が丘4丁目3番2号 帝人株式会社 東京研究センター内 Tokyo, (JP) <b>(74) 代理人</b> 弁理士 前田純博(MAEDA, Sumihiro) 〒100 東京都千代田区内幸町2丁目1番1号 帝人株式会社 知的財産部内 Tokyo, (JP)		<b>(81) 指定国</b> AU, CA, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>添付公開書類</b> 国際調査報告書
<b>(54)Title: ORIENTATED FILM HAVING PORES</b> <b>(54)発明の名称</b> 空孔を有する配向フィルム  <b>(57) Abstract</b> An orientated film which has a characteristic that the scattering degree of light is varied with the incident angle of the light and which is useful for the improvement of image quality on a liquid crystal display, particularly, for a view angle improving film by which a view angle can be widened. The orientated film is made of thermoplastic polymer and has a number of fine pores which contribute to the above mentioned scattering characteristic. A film made of thermoplastic polymer is stretched in one direction under the conditions of temperature and draw ratio under which grooves are produced in the surface of the film in a direction perpendicular to the drawing direction. <div data-bbox="1262 1687 2004 2550"><p>030613 3.00 02:00 15:00um</p></div>		

(57) 要約

入射角度により光の散乱性が変化する特性をもつ配向フィルムであり、例えば液晶表示装置における画質の向上、特に視野角を広げることができる視野角改善フィルムとして有用である。この配向フィルムは熱可塑性高分子からなり、かつ上記散乱特性に寄与する微細な多数の空孔をフィルム内部に含有している。そして、熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるような温度、延伸倍率の条件下に一軸延伸することによって製造することができる。

参考情報

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に記載されたPCT加盟国を特定するために使用されるコード

AL	アルバニア	ES	スペイン	LR	リベリア	SG	シンガポール
AM	アルメニア	FI	フィンランド	LS	レソト	SI	スロヴェニア
AT	オーストリア	FR	フランス	LT	リトアニア	SK	スロヴァキア共和国
AU	オーストラリア	GA	ガボン	LU	ルクセンブルグ	SL	シエラレオネ
AZ	アゼルバイジャン	GB	英国	LV	ラトヴィア	SN	セネガル
BA	ボスニア・エルツェゴビナ	GE	グルジア	MC	モナコ	SZ	スワジランド
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MD	モルドヴァ共和国	TD	チャード
BE	ベルギー	GK	ガンビア	MG	マダガスカル	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴス	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		ラヴィア共和国	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	HU	ハンガリー	ML	マリ	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	IE	アイルランド	MR	モリタニア	UA	ウクライナ
CC	中央アフリカ共和国	IL	イスラエル	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CF	コンゴ	IS	アイスランド	MX	メキシコ	US	米国
CH	スイス	IT	イタリア	NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CI	コート・ジボアール	JP	日本	NL	オランダ	VN	ヴェトナム
CN	中国	KE	ケニア	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	KR	韓国	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェコ共和国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KR	大韓民国	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	RO	ルーマニア		
EE	エストニア	LC	セントルシア	RU	ロシア連邦		
		LI	リヒテンシュタイン	SD	スーダン		
		LK	スリランカ	SE	スウェーデン		

## 明 細 書

### 空孔を有する配向フィルム

#### 技術分野

本発明は角度に依存して光散乱性が変化するフィルムに関する。さらに詳しくは入射角度により光の散乱性が変化する特徴を利用した視角制御板として、また、液晶表示装置に用いた場合には画質の向上、特に視野角を広げることができる視野角改善フィルムとして有用な、角度に依存して光散乱性が異なる特性をもつ、空孔を有する配向フィルムに関する。

#### 背景技術

一般の透明なプラスチックやガラスからなるシート状成形体は、あらゆる角度から入射された光に対して高い透明性を有し、窓、種々の光学材料に用いられている。しかし、上記の如き透明なガラスの表面に凹凸を形成させたシートとしたり、プラスチック中に粒径が数ミクロンの微粒子を均一に分散させたプラスチックシートとすることにより、シートへの入射光を散乱する機能を付与することができ、かかるシートは光散乱板としても利用されている。この光散乱板を、液晶表示装置の前面にある偏光板の前面に配置することにより、液晶表示装置の視野角が改善され、広い視野角が得られることが知られている。

しかしながら、上記光散乱板は、あらゆる方向からの入射光をランダムに散乱する。特定の角度より入射した光を選択的に散乱することはない。

一方、光線透過率が入射角度に依存し、光散乱性が角度により変化するという特性を有する透明な成形体は、例えばある方向からは見えるが他の方向からは見えにくいといった視角制御板として利用することができる。

このような特性を有する光学素子としては、ガラスやプラスチック等の透明基板上に格子状の凹凸等を設け、光の回折効果を利用した回折型光学素子が古くから知られている。しかしながら、これは微細加工等を必要としており、ある特定の用途においては有効であるが、大面積化が必要な用途においては生産性が低く、高価にならざるを得ないといった問題点がある。

特開昭 6 2 - 6 5 9 5 7 号公報には、観察者からはよく見えるが、観察者以

外の一定の角度方向からの光は遮断するフォトクロミック性を有するガラスが記載されている。このガラスは2枚のガラスの間に、感光性樹脂から硬化形成された微細な立体パターンを配したものであるが、その立体パターン形成のために微細加工が必要である。また製造工程のステップ数が多く煩雑であり、さらに光が当たると着色してしまう。

特公平7-58361号公報、特開昭64-40902号公報、特開昭64-77001号公報には、特定の入射角度の光のみ散乱させる光制御板が記載されている。しかしながらこの光制御板は、屈折率の異なる2つの微小領域が一定の方向に平行に周期的に配列した光硬化樹脂からなる層状の構造体であり、屈折率の異なる硬化樹脂を与える2種類以上の重合性モノマー及び／またはオリゴマーを用いて製造される。この場合、かかるモノマー等の重合性や屈折率差の大きさ等を最適化する必要がある。また、この光硬化層は外部応力に対する耐性が弱いため、プラスチックフィルム等の間にこの光硬化層を挟持したり、ガラス等の透明基材上に積層して用いる場合が多いと思われる。また製造において工程数が多く煩雑であり、生産性に問題がある。

特開平9-166702号公報(1997. 6. 24公開)には、ポリマーフィルムを、これを溶解しない溶剤及び／又は界面活性剤の溶液に浸漬させ、ついでロールで巻きとることによって光の透過に角度依存性を有する光制御フィルムが得られることが開示されている。しかしながらかかる方法は、フィルムを溶剤等に浸漬し、ついでロールにて屈曲させてフィルム表面にひび割れ(ここではクレーズと呼ばれている)を発生させた後、溶剤等を除去していることから、製造法が複雑である。この方法では、溶剤等によって変質したフィルムの表面にのみひび割れが発生するため、フィルムの表面状態が光学特性を決定する。しかし、製造には溶剤等を用いることから表面状態を制御することは難しいと考えられる。さらにひび割れのピッチを小さくすることが困難であり、例えば、正面はヘーズが高いが、斜めから見るとヘーズが低いといったフィルムを作成することは難しいと推定される。さらに、フィルムにカールが発生しやすいこと、表面性が光学特性を決定しているため、ハードコート処理等をクレーズ表面に実施した場合には光学特性が大きく変化することが考えられる。

### 発明の開示

本発明の目的は、入射角度により光散乱性が変化する新規なフィルムを提供することにある。

本発明の他の目的は、特定の方向から入射された光は透過し、他の方向から入射された光を散乱させる機能を有する新規な光散乱性フィルムを提供することにある。

本発明のさらに他の目的は、本発明の上記フィルムの用途としての液晶表示装置、視野角改善フィルムおよび視角制御板を提供することにある。

本発明のさらに他の目的は、角度に依存して透過光の散乱性が変化するフィルムを、生産性よく工業的に有利に製造する方法を提供することにある。

本発明のさらに他の目的および利点は以下の説明から明らかになる。

本発明者らは熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるように延伸すると、延伸によって高分子鎖が配向したフィルム内部に微細な多数の空孔が延伸方向に向かってほぼ周期的に発生すること、このようにして得られた配向フィルムは入射角度により光散乱性が変化するを見い出した。さらに、この延伸条件を適宜選択することによって入射角度による透過光の散乱性が変化し、最大の透過光が生じる角度をコントロールできることを見い出した。本発明はかかる知見に基づいてなされたものである。

本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、

熱可塑性高分子からなり、かつ微細な多数の空孔を内部に含有する、角度に依存して透過光の散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルムによって達成される。

そして、上記空孔を有する配向フィルムは、熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるように一軸延伸することによって製造することができる。

### 図面の簡単な説明

第1図は、実施例1における本発明のフィルムの表面に垂直でかつ延伸方向

(図の左右方向) に平行な断面の走査型電子顕微鏡による撮影像である (撮影倍率 2000 倍)。

第 2 図は、実施例 1 における一軸延伸機模式図である。

第 3 図は、実施例 1 における本発明のフィルムの平行光線の分光透過率を表わす。

第 4 図は、平行光線透過率の入射角度依存性の測定における光学系概略図である。

第 5 図は、平行光線入射による出射光の散乱状態の測定における光学系概略図である。

第 6 図は、実施例 1 におけるフィルムの平行光線の透過率の角度依存性を表わす。

第 7 図は、実施例 1 における本発明のフィルムを用いていない液晶表示装置の概略図である。

第 8 図は、実施例 1 における本発明のフィルムを用いた液晶表示装置の概略図である。

第 9 図は、液晶表示装置の測定光学系概略図である。

第 10 図は、実施例 2 における本発明のフィルム表面の原子間力顕微鏡による撮影像である。図の左右方向が延伸方向である。

第 11 図は、実施例 2 における本発明の透過型光学顕微鏡像 (倍率 400 倍) である。図の左右方向が延伸方向である。

第 12 図は、実施例 3 における本発明のフィルム表面の原子間力顕微鏡による撮影像である。図の左右方向が延伸方向である。

第 13 図は、実施例 4 における本発明の透過型光学顕微鏡像 (倍率 400 倍) である。図の左右方向が延伸方向である。

第 14 図は、実施例 5 における一軸延伸装置の概略図である。

第 15 図は、実施例 6 における本発明のフィルムの平行光線の透過率角度依存性を表わす。

第 16 図は、反射フィルムの相対反射率の角度依存性の測定光学系概略図である。

第 17 図は、実施例 6 における反射フィルムの相対反射率の角度依存性



( $c=0^\circ$ ) を表わす。

第 18 図は、実施例 6 における反射フィルムの相対反射率の角度依存性 ( $c=90^\circ$ ) を表わす。

第 19 図は、実施例 7 における本発明のフィルムの平行光線の透過率角度依存性を表わす。

第 20 図は、実施例 7 における本発明のフィルムの光散乱強度の角度依存性を表わす。

第 21 図は、実施例 7 の反射型液晶表示装置の構成模式図である。

第 22 図は、実施例 8 で作製した液晶表示装置の模式図である。

第 23 図は、実施例 9 における多層フィルムの模式図である。

第 24 図は、実施例 9 における本発明のフィルムの平行光線の透過率角度依存性を表わす。

第 25 図は、比較例 3 における反射フィルムの相対反射率の角度依存性 ( $c=0^\circ$ ) を表わす。

第 26 図は、比較例 3 における反射フィルムの相対反射率の角度依存性 ( $c=90^\circ$ ) を表わす。

第 27 図は実施例 11 における反射フィルムの断面模式図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の空孔を有する配向フィルムは、該フィルムの表面に対し、法線方向からの入射光で測定した全光線透過率が 60% 以上であり、かつ光線がフィルムに入射する方向によりヘーズが異なるので、入射角により光線透過率が異なる。そして図 4 に示す光学系にて測定を行った際に、該フィルムは次の条件を満足する光線透過率を示すことが好ましい。なお、本発明の配向フィルムを主に光透過部材として用いる場合や、液晶表示装置に用いられる視野角改善フィルムとして用いる際には、全光線透過率としては好ましくは 80% 以上であり、より好ましくは 87% 以上である。なお、ここで全光線透過率は JIS K 7105 で定義されるもので、国際照明委員会 (CIE) が規定する標準の光 A をフィルムに対して垂直に入射させたときに、フィルムの前方に散乱したすべての光を透過光として検出している。

ここで図4において、10は平行光を照射する光源、11は検出器、12は入射光、13は試料のフィルムであり、光線の入射方向(=出射方向)はフィルム表面の法線とのなす角 $\theta$ (°)とその法線を回転中心としたフィルム面上での回転角 $R$ (°)から定義される。そして光線透過率が最小の平行光線透過率 $T_{min}$ (%)、そのときの入射角 $\theta_{min}$ (°)、光線透過率が最大の平行光線透過率を $T_{max}$ (%)、そのときの入射角を $\theta_{max}$ (°)とした場合に、 $0^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  かつ  $-180^\circ < R \leq 180^\circ$  の範囲において、本発明の配向フィルムは下記式

$\theta_{min} < \theta_{max}$  のときは

$$T_{max}/T_{min} > 1.5 \quad \dots (I)$$

$\theta_{min} > \theta_{max}$  のときは

$$\{T_{max} \times \cos(\theta_{min})\} / \{T_{min} \times \cos(\theta_{max})\} > 1.5 \quad \dots (II)$$

を満足するような回転角 $R$ を有する。

なお、基準位置としての回転角 $R = 0^\circ$ の位置は、測定のための光学装置において任意に設定することが出来る。同じ $R$ 値においてこの条件は満足されなくてはならない。入射光は平行光線であり、本発明においては光源にハロゲンランプを用い、フォトマル検出器の前に、JIS Z8701において定義される $Y$ 値を得るための $Y$ 視感度フィルターが設定された光学系を有する、大塚電子(株)製の液晶表示装置評価装置(商品名「LCD5100」)によって定義した。

本発明で言う入射角度によりヘーズが異なるとは、入射角の変化に伴い、フィルム中を伝搬する光の行路長が変化するために生じる現象を指すのではなく、フィルム内部の構造に起因して生じる現象を指す。行路長の増加によって単純にヘーズまたは吸光率が増大する散乱体、及び吸収体とは区別するために、上記条件において $\theta_{min} > \theta_{max}$ のとき行路長を補正している。

本発明の配向フィルムは、特に液晶表示装置における視野角改善フィルムとして好適に用いられるが、本発明の配向フィルムを建材等における視角制御板として用いる際には、下記式

$\theta_{min} < \theta_{max}$  のときは



$$T_{\max}/T_{\min} > 2 \quad \dots (I')$$

$\theta_{\min} > \theta_{\max}$  のときは

$$\{T_{\max} \times \cos(\theta_{\min})\} / \{T_{\min} \times \cos(\theta_{\max})\} > 2 \quad \dots (II')$$

を満足することがより好ましい。もちろん、この条件を満たす配向フィルムを液晶表示装置に使用してもよい。

なお、本発明の配向フィルムは、 $R=0^\circ$  の位置をフィルムの配向（延伸）方向とした場合には、この配向フィルム表面に垂直でかつ配向方向に平行な平面内において、上記式（I）、（II）を満足することに相当する。

本発明の配向フィルムにおいて、波長 400～1500 nm における分光透過率は、多少の凹凸は見られてもよいが、通常は、実質的に単調に増加するか、一定か、あるいは減少する。したがって、例えばフォトリソを用いたホログラムにおいて見られるような着色などの分光透過率の波長分散は実質的にはない。そしてこの配向フィルムは、これを構成する熱可塑性高分子の透明性が良好であるので、着色せず、透過光、散乱光とも実質的に無色である。

例えば、実施例 1 において、本発明の空孔を有する配向フィルムの平行光線透過率を測定したところ、図 3 に示すように、測定波長 500 nm、1500 nm での分光透過率はそれぞれ 30.3%，78.2% であり、 $T_{1500}/T_{500}=2.58$  であった。

本発明の配向フィルムは、波長 500 nm と 1500 nm によって測定されたときのフィルムの平行光線透過率を、それぞれ  $T_{500}$ （%）、 $T_{1500}$ （%）とした場合、好ましくは下記式

$$0.5 \leq T_{1500}/T_{500} \leq 3.0 \quad \dots (III)$$

$$\text{かつ } 3\% \leq T_{500} (\%) \leq 85\% \quad \dots (IV)$$

を満足し、より好ましくは

$$0.9 \leq T_{1500}/T_{500} \leq 1.0$$

$$\text{かつ } 5\% \leq T_{500} (\%) \leq 83\%$$

を満足する。一般に光散乱性フィルムの平行光線透過率を測定した場合、透過率は波長に依存し、それが該フィルム内部の屈折率分布を表していることが知られている。例えば、ある高分子のフィルム中に、それと屈折率の異なる球形

の微粒子が分散されたフィルムを考えた場合、平行光線透過率の波長分散は該微粒子の平均直径に依存することが知られている。上記で定義される  $T1500/T500$  及び  $T500$  はフィルム内部の空孔の大きさ、分布状態、密度等の情報を含んでいるものと考えられるが、それらの寄与の程度を個別に分離することは困難である。いずれにしても、上記範囲を満足することにより、本発明の配向フィルムは、入射角度に特異的に光を散乱するという特性が良好である。

特に  $T1500/T500$  が 30 より大きい場合には、後方散乱が多くなる。また、 $T500$  (%) が 3 % より小さい場合には、透明性が低く、後方散乱が大きくなる。また、85 % 以上では目的の光学特性である、光線の光散乱性が角度によって変化すること、すなわち透過光を制御することが困難な場合がある。

さらに、本発明の配向フィルムを液晶表示装置の視野角拡大フィルムとして用いる際には、後方散乱がさらに少なくかつ透過光を制御する目的から、好ましくは

$$0.9 \leq T1500/T500 \leq 8$$

$$\text{かつ } 5\% \leq T500 (\%) \leq 80\%$$

であり、さらに好ましくは

$$0.9 \leq T1500/T500 \leq 7$$

$$\text{かつ } 7\% \leq T500 (\%) \leq 80\%$$

である。

なお、本明細書中で用いる  $T1500$  及び  $T500$  の値は、(株)日立製作所製の分光光度計(商品名「U-3500」)において、ダブルビームの平行光線における透過率の測定において得られたものである。また、それらの値は入射光をフィルム表面の法線方向から入射した値で定義した。

本発明の空孔を有する配向フィルムは、成形性に優れている点から、透明性が良好な熱可塑性高分子から実質的になる。

本発明に用いる熱可塑性高分子は、ガラス転移点温度が  $50 \sim 300^\circ\text{C}$  のものが好ましく、より好ましくは  $80 \sim 250^\circ\text{C}$  である。ガラス転移点温度が  $50^\circ\text{C}$  未満ではフィルム成形後の耐熱性が不足することがあり、 $300^\circ\text{C}$  を超え

ると成形性が問題となる場合がある。

かかる熱可塑性高分子としては、例えばポリカーボネート、ポリアリレート、ポリメタクリレート、ポリアクリロニトリル、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリビニルアルコール、ポリエーテルサルホン、ポリサルホン、ポリイミド、ポリアミド、ポリエーテルケトン、ポリオレフィン、トリアセチルセルロース、芳香族系高分子液晶等を挙げることができる。かかる熱可塑性高分子の共重合体または2種類以上のブレンドを用いてもよい。

かかる熱可塑性高分子としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリオレフィン、ポリサルホン、ポリエーテルサルホンおよびそれらの共重合体等の非結晶性高分子が好ましい。非結晶性の高分子とは通常の延伸条件において、結晶相、液晶相をとらない高分子であり、これは一軸延伸後または一軸延伸中に相変化を生じないことから、光学特性を制御しやすい場合が多く好ましい。この中で、材料入手の経済性、耐熱性、透明性、成形性等からポリカーボネートが特に好ましい。

ポリカーボネートの平均分子量としては、好ましくは0.5～20万、より好ましくは0.8～10万である。平均分子量が0.5万未満では耐熱性等に問題がある場合があり、平均分子量が20万より大きい場合には目的の光学特性を得られない場合がある。ここで言う平均分子量とは、特別に断らない限り、数平均分子量のことであり、GPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）法によるポリスチレン換算の数平均分子量とする。また、ポリカーボネートとしては公知のものを用いることが出来るが、例えば、ビスフェノールAを主成分として用いたもの、ビスフェノールAに他の成分が共重合されたポリカーボネートも好適に用いることが出来る。他の成分としては、例えばビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、9,9-ビス（4-ヒドロキシフェニル）フルオレン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、2,2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン、2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-2-フェニルエタン、2,2-ビス（4

ーヒドロキシフェニル) - 1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフロロプロパン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)サルファイド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフォン等を挙げることができる。かかる他の成分は、ポリカーボネートの全繰返し単位中20モル%以下、好ましくは10モル%以下で含有してもよい。またポリカーボネートの一部を、ポリカーボネートの性質、例えば耐熱性、溶解性を改良するために、例えばテレフタル酸および/またはイソフタル酸成分を含むポリエステルカーボネートに置き換えることもできる。

特に、材料の入手のしやすさ、フィルムの延伸のしやすさの観点から、ビスフェノールAをビスフェノールの主成分として用いたポリ-4, 4'-ジオキシジフェニル-2, 2-プロパンカーボネートが特に好ましく用いられる。

本発明の空孔を有する配向フィルムは、上記熱可塑性高分子の主鎖の多くが一方向に配向して伸び、かつ該フィルムの内部に微細な多数の空孔を含有する延伸フィルムである。この多数の空孔は、フィルム断面の走査型電子顕微鏡により倍率1000倍以上において観察することができる。特に、配向フィルムが一軸延伸フィルムである場合には、多数の空孔は、フィルム表面に対し垂直でかつ延伸方向に平行な断面において観測することができる。より詳しく説明するために、実施例1における走査型電子顕微鏡で観察したフィルム断面の構造の例として図1の写真を用いて説明する。図1において、周辺よりも黒い部分が空孔である。これらの微細な多数の空孔は、フィルムの内部に個々に独立して存在している。形状としては円形、あるいは一軸延伸方向にやや伸びた円形か三角形が観察されている。個々の空孔の大きさは概して0.005~10 $\mu$ mの範囲である。

本発明の空孔を有する配向フィルムの内部を、表面に平行な平面内において、フィルム表面から光学顕微鏡によって観察した(図11、13)。かかる平面内には、微小な明部と暗部とがほぼ均一に分散して見える。この微小な暗部はその内部に上記した微細な空孔が一つまたは多数存在する。これらは光が散乱するため透過率が減少していることによって暗く見えているものと推察される。これらの微小な暗部、すなわち微小な光学的暗孔は、幅が概して0.05

～40  $\mu\text{m}$ の範囲であり、該フィルムの（延伸）にほぼ垂直に向いていることがわかる。

本発明の空孔を有する配向フィルムは、光線の入射角度に依存して光散乱性が変化するという機能を有する。このような特異的な光学特性が発現される原因は、詳細は不明であるが、上述した該フィルム内部に見られる多数の微細な空孔が寄与していると推定される。ある方向に、これらの微細な多数の空孔の分布により周期的に変化する屈折率の分布が形成されて、まるで回折格子が形成されているかのような構造が存在し、それが光線の散乱性が角度によって変化するという光学特性に寄与しているものと思われる。

本発明の空孔を有する配向フィルムの膜厚としては、1  $\mu\text{m}$ から400  $\mu\text{m}$ 程度であることが好ましく、より好ましくは5  $\mu\text{m}$ から200  $\mu\text{m}$ である。

本発明の空孔を有する配向フィルムは、フィルム内部に微細な多数の空孔を含有する熱可塑性高分子からなることを特徴としている。これらの空孔以外には、本発明の優れた効果を奏する光散乱性に影響を与える他の素材は実質的に含有されない。そして、本発明の空孔を有する配向フィルムは下記方法により、有利に製造することができる。

すなわち、本発明によれば、さらに、熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるような温度、延伸倍率の条件下に一軸延伸することによる、角度に依存して透過光の散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルムの製造方法が提供される。

したがって、一軸延伸によって製造された本発明の配向フィルムは、延伸方向とはほぼ垂直方向に延びた溝がフィルム表面に観測できる。

このように生じた溝は、図10、12に示すように、原子間力顕微鏡にて観察することができる。延伸方向に対して垂直方向に延びた溝は、フィルム表面上に任意の20  $\mu\text{m}$ 四方の範囲において、単独あるいは複数存在し、さらに溝の方向は角度のばらつきが延伸方向の垂直方向を中心として通常 $\pm 20$ 度以内である。また、溝の長さaは5  $\mu\text{m}$ 以上であること、溝の幅bが0.01～15  $\mu\text{m}$ であること、溝の深さが1～200 nmであること、長さa ( $\mu\text{m}$ )と幅b ( $\mu\text{m}$ )の比a/bが1.5以上であることがそれぞれ好ましい。さらに

好ましくは、溝の方向のばらつきが $\pm 10$ 度以内、溝の長さが $6\mu\text{m}$ 以上、溝の幅が $0.05\sim 12\mu\text{m}$ 、溝の深さが $2\sim 150\text{nm}$ 、長さ $a(\mu\text{m})$ と幅 $b(\mu\text{m})$ の比 $a/b$ が $2.0$ 以上である。

一軸延伸方法には、一般に幅自由一軸延伸と、幅固定一軸延伸があるが、本発明の好ましい光学特性を得るためには、一方向にのみ主に張力が発生する幅自由一軸延伸が好ましい。特に幅自由縦一軸延伸が好ましい。また、湿式延伸、乾式延伸があるが、これらは用いる熱可塑性高分子によって適宜選ぶことができる。

本発明の配向フィルムは、上記方法、すなわちフィルムの表面に、延伸方向に対して溝が生じるように一軸延伸せしめることにより、該フィルム内部に微細な多数の空孔を有するものである。この一軸延伸は通常、降伏点伸度よりかなり高い伸度で、かつフィルムのガラス転移温度( $T_g$ )以下で行われる。フィルム表面に生ずる溝とフィルム内部に生ずる微細な多数の空孔は、その大きさ、数、存在割合等が延伸倍率、延伸温度などにより影響される。したがって、これらの条件を適宜選択することにより、目的の散乱特性を有する配向フィルムを得ることができる。

本発明によれば、熱可塑性高分子からなるフィルムを、例えば溶媒に浸漬する工程を経ることなく、あるいはロールに巻き付けてフィルムに歪みを与えたりすることなく、上記の如く一軸延伸することによって、フィルム内部に微細な多数の空孔を生じせしめ、前記した優れた特性のフィルムを得ることができる。

一軸延伸工程において、延伸が始まったフィルムは、降伏点を越えるころ、あるいは越えてから、ネッキングが起こりはじめる。さらに延伸を継続すると、フィルム内部に上記空孔が発生し、やがて破断する。熱可塑性高分子からなるフィルムを、ネックイン率が好ましくは $25\sim 70\%$ となる範囲内で選択して延伸することにより、特異的な散乱特性を示す本発明の配向フィルムを得ることができる。ここでネックイン率は、延伸前の膜厚を $A$ 、延伸後の膜厚を $B$ とした場合、 $100 \times (A - B) / A (\%)$ で表すものとする。多段延伸で行う場合には、すべての延伸終了後に上記ネックイン率となることが好ましい。ポリカーボネートの場合、ネックイン率を $35\sim 60\%$ とすることが好ましい。



熱可塑性高分子としてポリカーボネートを用い縦一軸延伸するときは、延伸倍率1.8～3.0で延伸することにより、本発明の配向フィルムを好適に製造することができる。特に、正面の光を散乱するフィルム ( $\theta_{\min} < \theta_{\max}$ ) を製造する場合は、延伸倍率2.3～3.0で延伸するのが好ましい。また、斜めからの光を散乱するフィルム ( $\theta_{\min} > \theta_{\max}$ ) を製造する場合は、延伸倍率1.8～2.3で延伸するのが好ましい。多段延伸の場合は、全延伸工程終了後に上記倍率となることが好ましい。また、一軸延伸工程における延伸温度は、好ましくはフィルムの $T_g$ 以下、より好ましくは $T_g - 50$  (°C) ～ $T_g$ の範囲である。

例えば4, 4'-ジヒドロキシジフェニルプロパン (ビスフェノールA) とホスゲンとから製造することができるポリカーボネート (ポリ-4, 4'-ジヒドロキシジフェニル-2, 2-プロパンカーボネート) をメチレンクロライドに溶解させて得られたドープより湿式製膜した未配向フィルムを用いる場合を説明する。このとき、かかるポリカーボネートからなるフィルムのガラス転移点温度を $T_g'$  (°C) とした場合、この未配向フィルムは、延伸温度 $D$  (°C) が $T_g' - 50 \leq D \leq T_g'$ 、好ましくは $T_g' - 30 \leq D \leq T_g'$ であり、ネックイン率が35%以上60%以下となる条件で延伸することが好ましい。ここで、 $T_g'$ は、溶媒 (この場合はメチレンクロライド) を含んだフィルムのガラス転移点温度であり、該フィルム中に含有する溶媒量により変化 (溶媒量の増加に伴って低下) する。また、フィルム中に上記延伸温度範囲で液体または気体となるその他の添加物を添加した場合も、上記延伸温度で延伸することが好ましい。フィルム中の添加物として、上記延伸温度範囲で固体となる添加物を用いた場合には必ずしもこの限りではない。

本発明の配向フィルムを製造するには、透明性及び均一性の点で流延製膜法にて得られたフィルムを上記一軸延伸することが好ましい。その場合には、かかるフィルム中には用いた溶媒を好ましくは15重量%まで含んでいても良い。そして、延伸後の配向フィルム中の溶媒量は3重量%以下となることが好ましく、1重量%以下がより好ましい。

特に、ポリカーボネートの場合、流延製膜で用いる溶媒として上記メチレン

クロライドの他、例えばジオキソランが好ましく用いられる。

また、本発明の空孔を有する配向フィルムは、通常、光学異方性を有する。一般に熱可塑性高分子からなるフィルムを一軸延伸したものは、その延伸方向に光学軸を有した光学異方体となり、光学異方性を示す。ここでいう光学異方性は、フィルム面内での遅相軸方向の屈折率と進相軸方向の屈折率との差である複屈折 $\Delta n$ と膜厚 $d$ との積である $\Delta n \cdot d$ （リターデーション）で表される。本発明のフィルムでは、配向方向が延伸軸と一致する。正の固有複屈折率を有する熱可塑性高分子を用いた場合には、延伸軸は遅相軸の方向となり、負の固有複屈折率を有する熱可塑性高分子を用いた場合には、進相軸と一致する。必要とされる $\Delta n \cdot d$ の大きさは用途により異なるので一概には言えないが、 $50 \text{ nm}$ 以上が好ましい。本発明の配向フィルムの持つ光学異方性を積極的に利用すれば、例えば、STN（スーパーツイストネマチック）モードにおける色補償と視野角拡大を両方兼ねたフィルムを製造することも可能である。この場合、遅相軸方位の分布は $\pm 10^\circ$ 以内であることが好ましい。本発明の空孔を有する配向フィルムは、ポリカーボネートからなるフィルムを用い一軸延伸して製造される場合には、光学異方性を表す $\Delta n \cdot d$ が波長 $590 \text{ nm}$ で測定したとき $200 \text{ nm}$ 以上であってもよい。 $\Delta n \cdot d$ を $200 \text{ nm}$ 以上とすることにより例えば液晶表示装置の色補償フィルムとしても使用することができる。

本発明の配向フィルムは、液晶表示装置に適用することにより、視野角を改善することができる。その場合かかる配向フィルムは、液晶層に対して観測者側に配置することが好ましい。ここで液晶表示装置とは、例えばアクティブマトリクス駆動、単純マトリクス駆動から選ばれる駆動方式と、例えばツイストネマチック、スーパーツイストネマチック、強誘電性液晶、反強誘電性液晶モードから選ばれる液晶モードとを組み合わせ用いた表示装置が挙げられるが、もちろんこれに限定されるわけではない。本発明の配向フィルムは、角度特異的光散乱性に優れており、主に視認性に優れた方向の光を特定の方に広げることができるので、液晶表示装置の視野角を広げることが可能となる。かかる配向フィルムは1枚で用いても効果があるが、複数枚用いても良い。液晶表示装置の視野角改善フィルムとして用いるときには、式（1）、（11）にお

いて定義される最大の平行光線透過率 ( $T_{max}(\%)$ ) は、20%以上であることが好ましい。

偏光板を用いた液晶表示装置においては、本発明の配向フィルムは、液晶層より観測者側にあれば良く偏光板よりも外側でも内側に配置しても良い。ただし、本発明の配向フィルムにおいて、光学異方性が存在し、かつ偏光板の内側に装着する場合、この光学異方性が着色等の問題となる場合には、偏光板の偏光軸または吸収軸とかかる配向フィルムの進相軸または遅相軸を合わせることで、この問題を回避することが出来る。同様に偏光板の外側に貼り合わせる時にも、例えば、偏光眼鏡で液晶表示装置を観察したときに、配向フィルムの光学異方性により着色等の問題が生じる場合にも、偏光板の偏光軸または吸収軸とかかる配向フィルムの進相軸または遅相軸を合わせることで回避することが出来る。偏光板の外側に用いる際に、光学異方性の存在が問題とならない場合には、目的に応じて適当な角度で貼り合わせる事が可能である。また、本発明の配向フィルムは1枚でも液晶表示装置の視野角改善に効果があるが、2枚用いてお互いの延伸軸を直交させ、位相差を打ち消して用いてもよい。なお、かかる配向フィルムは光学異方性を打ち消すようにアニール処理等を行っても良い。

また、液晶表示装置用の視野角改善フィルムの光学特性は、適用する液晶表示装置に合わせて設定することができる。バックライトシステムにおけるレンズシートを用いた光の集め方も視野角を改善するための重要な因子である。本発明の配向フィルムは、バックライトシステムにおける光散乱性フィルムとして用いると、特定の方向の輝度を高めることができ、視野角の改善に効果的である。特に、レンズシートの上に設置することにより、正面の輝度はほとんど変化させずに、レンズシートの斜め方向から見た輝度上昇を抑えることが出来るといった液晶表示装置の表示品位を向上させることが可能となる。

本発明の配向フィルムは、位相差フィルム、偏光フィルム及び液晶層を構成する基板から選ばれる一種以上と組み合わせて用いることができる。本発明の配向フィルムは、配向フィルム／偏光フィルム／位相差フィルム、の順で組み合わせて用いることが好ましい。このようにこれらを組み合わせて液晶表示装置に用いる場合、反射損失等の関係で出来るだけ、例えば粘着剤を介して密着

させて貼り合わせることを好ましい。粘着剤としては、光の界面反射損失を抑えるため、かかる配向フィルムと屈折率が出来るだけ近いものを用いることが好ましい。

さらに、本発明の配向フィルムは、広く表示装置等の光学装置の部材として利用することが出来る。例えば、上記に述べた液晶表示装置のバックライトシステムにおける光散乱板としての他、反射型液晶表示装置において、金属膜等の反射膜を積層した光反射板として、あるいは、該装置の背面（観測者と反対側）に金属膜を設置したとき、該フィルムを前面（観測者側）に設置する前方散乱フィルムとして用いることもできる。この場合には通常、反射板としては鏡面反射するものを用いることができる。上記いずれの場合でも金属膜としてはフラットな鏡面状のものだけではなく、例えばブレード状の金属膜を用いることも可能である。ブレード状の金属膜を用いた場合には、特に反射強度の指向性を自由に設計することが可能である。また、この光反射板は投写型表示装置の透過、反射型スクリーンにも用いることができる。これらの用途では本発明の配向フィルムを光散乱板として用いている。そして、通常の散乱板、例えば球形のビーズを樹脂に混ぜた構成を持ったものと比較して、本発明の配向フィルムを用いた場合には散乱する方向を制御することが可能であるため、例えば特定の方向に輝度が高い反射フィルムをより得やすいといった利点がある。

かかる金属としては、例えばステンレス、アルミニウム、金、銀、白金及びこれらの合金を挙げることができる。金属膜の厚さは、 $10 \sim 10000 \text{ \AA}$ の範囲が好ましい。また、かかる配向フィルムを複数枚用いこれに反射膜を積層してもよい。金属膜の積層方法としては、公知のスパッタリング技術、塗工技術、蒸着技術、ソルゲル塗工技術等を用いることが出来る。

ブレード状の金属膜の形成方法としては、例えば以下の2つの方法が挙げられる。1つは所望のブレード状の金型を作成し、本発明の片側の面にその形状を熱により転写し、ブレード状になった面上にスパッタリングや蒸着法等により、金属膜を積層させる。その他には、同様にブレード状の金型を作成し、金型と本発明のフィルムの間には光または熱硬化樹脂等を挟持させ、硬化後に金型を外した後、ブレード状の面上にスパッタリングや蒸着法等により、金属膜を積層させるといった方法が挙げられる。

上記の如く本発明の配向フィルムに金属膜等からなる反射膜を設置した反射フィルムは、例えば、再帰反射性の反射部材として道路標識に用いることができる。また自動車、自転車あるいは人間等に設置して使用することもできる。この反射フィルムは配向フィルムの配向方向（＝延伸方向）に略平行でフィルム表面に垂直な面上に入射光線があり、かつ配向フィルム側から光を入射した場合、入射光線方向と略同じ方向に強く光を反射するという該反射部材の特徴を利用したものである。この場合、配向フィルムは複数枚用いることも可能である。

また、本発明の配向フィルムは、他の用途として、光線透過率が入射角によって異なるといった特徴を利用して、例えば建材用のガラス板または透明な高分子シートと貼り合わせることにより、該配向フィルムを通して見る景色が、ある方向から見たときは見えるが、別の角度から見たときは見えにくいといった視界を制御する視界制御フィルムとして用いることができる。視界制御フィルムとして用いるときには、式（１），（１１）において定義される最大の光線透過率（ $T_{max}(\%)$ ）を、２０％以上とすることが好ましい。

さらに、本発明の配向フィルムは、様々な光学特性をとることが可能である。例えば、かかる配向フィルムの最小の光線透過率を与える入射角度で入射した場合に得られる出射光の散乱状態が、等方的でなく異方的である場合、この配向フィルムを建材用のガラス板または高分子からなる透明なフィルムまたはシートと貼り合わせることにより、室内における採光といった観点から、いわゆるスリガラスとは異なる特異的な散乱性を有する曇りガラスを、例えば建材用や自動車用として供給することができる。

ここでいう異方的な散乱状態とは、図５に示されるような光学系において、出射光の検出方向を試料平面上に投影した際の試料平面上での出射光の検出方向角度を $\alpha(^{\circ})$ 、出射光の検出方向と入射光の入射方向とのなす角を $\beta(^{\circ})$ とした場合、 $\beta$ を一定として $\alpha$ を変えた場合、出射光の検出強度が $\alpha$ に依存して変化する現象を指す。なお図５において２０は試料フィルム、２１は検出器、２２は光源、２３は入射光、２４は出射する散乱光線である。

本発明の配向フィルムは必要に応じて公知のハードコート処理、反射防止処



理、妨眩処理等を片面または両面に施しても良い。これらの処理には、例えばアクリルポリマー、シリコンポリマー等の光硬化性樹脂や熱硬化性樹脂、酸化けい素等の金属酸化物等が用いられる。処理の際には粘着剤を使用してもよい。酸化防止性を付与するために配向フィルム上に金属膜を形成させてもよい。

さらにまた、本発明の配向フィルムはITO膜に代表されるインジウム酸化物からなる透明導電層を積層し、電極として用いることもできる。

また、本発明の配向フィルムは、透明ポリマーからなるフィルムまたはシートと組み合わせて用いることができる。かかる高分子としては、例えばポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリメチルメタクリレート等のアクリル系ポリマー、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリエーテルスルホン、ポリスルホン、ポリアリレート、トリアセチルセルロース等を挙げることができる。かかるフィルムまたはシートの厚さは0.01～5mmが好ましい。

本発明の配向フィルムは、入射角度により光の散乱性が変化する光学特性を損なわない範囲で、例えば、延伸のしやすさや表面平滑性を改良するための添加剤、シリカ等の滑剤を含有していてもよい。かかる添加剤としては、例えばキシレン、アルコール類、ケトン類等の有機溶媒、アクリル系やシリコン、金属酸化物系等の微粒子、フィラーを挙げることができる。この場合、添加剤の添加量としては該熱可塑性高分子に対して10重量%以下であることが好ましい。

本発明によれば、熱可塑性高分子からなるフィルムを一軸延伸することにより、入射した光が透過するとき、入射角度によりその光を散乱させるフィルム、すなわち光散乱性制御フィルムを提供することができる。かかるフィルムは延伸方向に配向されており、目的に応じたフィルムを得るためにその延伸条件を適宜選択することで、光を散乱させる入射角度を変えることができる。本発明の配向フィルムは従来の製膜設備を利用して製造することができ、生産性も高く、その工業的意義は極めて大きい。

次に本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの例に



よって限定されない。

なお、後述の実施例におけるその評価は次のようにして行った。

(1) ヘーズ、全光線透過率の測定

ヘーズ及び全光線透過率は、日本工業規格 JIS K 7105『プラスチックの光学的特性試験方法』に準じ積分球式光線透過率測定装置により測定した。評価装置としては、日本電色工業（株）製の色差・濁度測定器（商品名「COH-300A」）を用いた。

(2) 平行光線透過率の入射角度依存性の測定および平行光線の入射による出射光散乱状態の測定

入射角度を変えたときの平行光線の透過率、及び透過した散乱光の強度分布を、光源をハロゲンランプ、フォトマル検出器の前に、JIS Z 8701において定義されるY値を得るためのY視感度フィルターが設定された光学系を有する大塚電子（株）製の液晶表示装置評価装置（商品名「LCD5100」）を用いた。検出器の開口角は約  $3.5^\circ$ 、サンプル上のスポット径は垂直入射において4mmの円である。測定温度は  $25^\circ\text{C}$  とした。平行光線透過率入射角度依存性測定における光学系および平行光線入射による出射光散乱状態の測定における光学系概略図をそれぞれ、図4、図5に示す。平行光線透過率入射角依存性測定においては  $R=0^\circ$ 、 $\theta=0^\circ$  のときのブランクを透過率100%とし、一方、平行光線入射による出射光散乱状態の測定においてはサンプルを設置した状態で、 $\alpha=0^\circ$ 、 $\beta=0^\circ$  の状態を100%と設定した。図4で10は光源、11は検出器、12は入射平行光線、13は測定サンプルをそれぞれ示す。また、図5で20は測定サンプル、21は検出器、22は光源、23は入射平行光線、24は出射散乱光線をそれぞれ示す。

(3) 相対反射率の入射角依存性の測定

フィルムの相対反射率は、光源としてハロゲンランプを用い、フォトマル検出器の前に、JIS Z 8701において定義されるY値を得るためのY視感度フィルターが設定された光学系を有する大塚電子（株）製の液晶表示装置評価装置（商品名「LCD5100」）を用いて評価した。検出器の開口角は約  $3.5^\circ$ 、サンプル上のスポット径は垂直入射において4mmの円である。測定光学系概略図を図16に示す。図16において70は測定サンプル、71は

光源、72は検出器、73は反射測定光線、74は測定点、75は入射平行光線である。本測定は透明フィルム基板上にスパッタ法により積層したアルミニウム／ステンレスの2層膜を用いて入射角 $a = -30^\circ$ 、反射角 $b = 30^\circ$ のとき、反射率を100%と設定した。以下、この金属膜をリファレンスサンプルと呼ぶ。

#### (4) 液晶表示装置における視野角の評価

液晶表示装置における視野角は、装置として、光源をハロゲンランプ、フォトマル検出器の前に、JIS Z8701において定義されるY値を得るためのY視感度フィルターが設定された光学系を有する大塚電子(株)製の商品名「LCD5100」を用いて測定した。検出器の開口角は約 $3.5^\circ$ 、サンプル上のスポット径は垂直入射において4mmの円である。測定光学系概略図を図9に示す。図9において51は液晶表示装置、52は検出器、53は測定される光線である。測定温度は $25^\circ\text{C}$ とした。

なお、実施例1においては、SOCIETY FOR INFORMATION DISPLAY INTERNATIONAL SYMPOSIUM DIGEST OF TECHNICAL PAPERS / VOLUME XXIV, p561-564 (1993)に記載の方法を参考にし、8階調表示を行い、階調反転、黒潰れ、白抜け、コントラストを評価することにより、上( $c = 180^\circ$ )下( $c = 0^\circ$ )左( $c = -90^\circ$ )右( $c = 90^\circ$ )方向における視認性の良い範囲である視野角範囲を評価した。

#### (5) 走査型電子顕微鏡によるフィルム断面の観察

フィルム断面は液体窒素中で凍結切断を行うことにより形成し、その上に、約3nmのプラチナコーティングを行った。電子顕微鏡としては(株)日立製作所製の走査型電子顕微鏡(商品名「S-900」)を用いた。加速電圧は3.0kVとした。

#### (6) 原子間力顕微鏡によるフィルム表面の観察

フィルム表面はセイコー電子工業(株)製の原子間力顕微鏡(商品名「SFA300」)を用いて、フィルムの表面における任意の $20\mu\text{m}$ 四方を測定した。

#### (7) ガラス転移点温度の測定

フィルムのガラス転移点温度は、T A インスツルメント・ジャパン（株）製の示差熱分析装置（商品名「D S C 2 9 2 0」）及びその解析ソフトより求めた。ガラス転移点温度はD S C チャートにガラス転移点として変化の現れる付近における最大の傾きの点をガラス転移点と定義した。また、昇温速度は20℃/分とした。

#### （8）分光透過率の測定

フィルムの分光透過率は、ダブルビームの平行光線を有する（株）日立製作所製の分光透過率測定装置（商品名「U-3500」）にて測定を行った。

#### （9）光学異方性の測定

フィルムの光学異方性は測定波長590nmにおける $\Delta n \cdot d$ （ $\Delta n$ ；複屈折率、 $d$ ；膜厚）で評価した。測定装置としてはキセノンランプを光源とし、光弾性変調素子及びモノクロメータを有する日本分光（株）製 分光エリプソメータ（商品名「M150」）で行った。

#### 〔実施例1〕

溶媒をメチレンクロライドとした流延製膜法によりポリカーボネート（帝人化成（株）製のポリ-4,4'-ジオキシジフェニール-2,2-プロパンカーボネート（商品名「C1400」）、数平均分子量、重量平均分子量がGPCによるポリスチレン換算分子量でそれぞれ22000、74000を使用）からなる幅15cm、膜厚75 $\mu$ mで、表1に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は159℃であった。

このフィルムを図2の模式図に示すような縦30cm横30cmの加熱延伸ゾーンを有する縦一軸延伸装置により、表1の条件にて延伸し本発明の配向フィルム1を得た。なお、図2において、1～4はニップロール、5は加熱延伸ゾーン、6は熱可塑性高分子フィルムである。

こうして得られたフィルム1の特性を表1に示す。また、波長400～1500nmまでの分光透過率分布を図3に示す。さらに図4の光学系で測定した平行光線透過率の $R$ 、 $\theta$ 依存性を図6に示す。図6では $R=0$ 、 $90^\circ$ のとき $\theta$ を正の値で表し、一方、 $R=-90^\circ$ 、 $180^\circ$ のとき $\theta$ を負の値で表した。また、図6では $R=0^\circ$ 、 $90^\circ$ 、 $-90^\circ$ 、 $180^\circ$ における平行光線透過

率の $R$ 依存性を一つの図に表したため、 $R = -90^\circ$ 、 $180^\circ$ のとき $\theta$ は負の値となっているが、式(1)、(11)においては、これら負の値は正の値に変換して考慮するものとする。図6のグラフ中、横軸は $\theta$  ( $^\circ$ )、縦軸は平行光線透過率(%)、実線は $R = \pm 90^\circ$ での結果、破線は $R = 0, 180^\circ$ での結果である。以下の図15, 19, 24においても同様である。

さらに、フィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面を、走査型電子顕微鏡により観察した。図1は撮影倍率2000倍の像であり、フィルム内部に微細な空孔が多数存在することを確認した。

また、原子間力顕微鏡を用いてこのフィルム表面における任意の $20\mu\text{m}$ 四方を観察したところ、溝の長さ $1\mu\text{m}$ 以上、幅 $0.01\sim 3\mu\text{m}$ 、深さ $1\sim 500\text{nm}$ 、溝の長さとの幅の比が $1.5$ 以上である溝が複数見られ、かつ溝は長手方向の方向分布が $\pm 10^\circ$ 以内であった。この溝の長手方向は延伸方向とほぼ直交している。

また、このフィルム1の内部の膜厚方向におけるほぼ中央部を倍率400倍の光学顕微鏡で観察した。遅相軸である延伸軸に対してほぼ垂直方向に延びた、透過光強度が相対的に低いために暗部に見える微小な光学的暗孔が多数観察された。

さらに、このフィルム1の熱的耐久試験を行った。1000時間 $90^\circ\text{C}$ の耐熱試験と、1000時間 $60^\circ\text{C}$ 90%(相対湿度)の耐湿熱試験をそれぞれ行ったが、フィルムの光学特性はほとんど変化しなかった。

光重合開始剤(チバガイギー社製のイルガキュアー184)を3重量%含むポリエステルアクリレート系モノマー(東亜合成(株)製M309)を、1-メトキシ-2-プロパノールに溶解した溶液を準備した。これを上記フィルムの両面に塗布し乾燥後、窒素雰囲気下にて紫外線を照射して該フィルム表面に $4\mu\text{m}$ の光硬化膜を形成させた。

得られたフィルムにおいて、上記光学特性を測定したが、ほぼ表1と同様の光学特性を有していた。このように、フィルム表面に存在している溝を埋めてしまってもほとんど光学特性に変化がないことから、フィルム表面の溝の長さや深さ等は本発明における光散乱特性を実質的に決定しているものではなく、フィルム内部の空孔の存在が光学特性を本質的に決定していることがわかる。

続いて上記フィルム1を、次のように液晶表示装置に実際に装着して評価した。まず、バックライト光源としては、市販品である日本電気（株）製のノート型パソコン（商品名「PC-9801NS/E」）に用いられているバックライトシステムを用いた。液晶セルとしては、セルギャップ8.1  $\mu\text{m}$ のITOおよびポリイミド付き90°左ねじれガラスセルを用いた。液晶はメルク社製の液晶（商品名「S811」）を0.5重量%含有した同じくメルク社製の液晶（商品名「ZL12293」）を用いて、90°ツイストネマチックセルを作製した。表示部分であるITOの面積は1  $\times$  1  $\text{cm}^2$ であった。さらに、図7に示すように、サンリツ（株）製の偏光フィルム（商品名「LLC2-9218S」）を粘着剤を用いて液晶セルの両側に貼り合わせ、前述のバックライトシステムの上に設置することにより、ノーマリーホワイトモードのツイストネマチック液晶表示装置を作製した。なお、図7において、30はバックライト、31はバックライト側の偏光フィルム、32はバックライト側の偏光フィルム透過軸、33はバックライト側のガラス基板、34はバックライト側のガラス基板上に形成されたポリイミド配向膜のラビング方向、35は観測者側のガラス基板、36は観測者側のガラス基板上に形成されたポリイミド配向膜のラビング方向、37は観測者側の偏光フィルム、38は観測者側の偏光フィルム透過軸方向である。

そして、前述の評価方法により上記フィルムの視野角を評価した。左方向（ $c = -90^\circ$ ）、右方向（ $c = 90^\circ$ ）、下方向（ $c = 0^\circ$ ）、上方向（ $c = 180^\circ$ ）においてそれぞれ、20°、30°、10°、10°の視野角範囲を有していることが判った。

次に、上記において作製したフィルム1を、図8に模式的に示すように、偏光フィルムの上に粘着剤を用いて設置し同様に評価した。なお、図8において、40はバックライト、41はバックライト側の偏光板、42はバックライト側の偏光フィルム透過軸、43はバックライト側のガラス基板、44はバックライト側のガラス基板上に形成されたポリイミド配向膜のラビング方向、45は観測者側のガラス基板、46は観測者側のガラス基板上に形成されたポリイミド配向膜のラビング方向、47は観測者側の偏光フィルム、48は観測者側の偏光フィルム透過軸方向、49は本発明のフィルム1、50は本発明のフィル

ム 1 の延伸軸方向である。すなわち、観測者側のガラス基板上は偏光フィルム／粘着層／本発明のフィルム 1 という構成の積層偏光フィルムが粘着層を介して貼り合わせている。

このフィルムを用いて前述の評価方法により評価したところ、左方向 ( $c = -90^\circ$ )、右方向 ( $c = 90^\circ$ )、下方向 ( $c = 0^\circ$ )、上方向 ( $c = 180^\circ$ ) においてそれぞれ、 $30^\circ$ 、 $30^\circ$ 、 $20^\circ$ 、 $20^\circ$  の視野角範囲を有していることが判った。すなわち、上記フィルム 1 を用いることにより、視野角範囲が拡大することが示された。

なお、図 7、8 の構成図に表示されている角度および上記の上下左右方向の角度の定義は、図 9 の測定光学系に記載されているものと同じである。

#### 〔実施例 2〕

溶融製膜法によりポリカーボネート（ポリ-4、4'-ジオキシジフェニール-2、2-プロパンカーボネート、数平均分子量、重量平均分子量は GPC によるポリスチレン換算分子量でそれぞれ 14000、45000）からなる幅 23 cm、膜厚 75  $\mu\text{m}$  で、表 1 に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は 154  $^\circ\text{C}$  であった。

この透明未延伸フィルムを用い、実施例 1 で用いた延伸機を用いて表 1 に示す延伸条件にて縦一軸 2 段延伸を実施し、目的のフィルム 2 を得た。

こうして得られたフィルム 2 の光学特性を表 1 に示す。

このフィルム 2 に対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ微細な多数の空孔を有することを確認した。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の 20  $\mu\text{m}$  四方を測定した像を図 10 に示す。図の左右方向が延伸方向である。図 10 から溝が数本観測され、そのうち図 10 のほぼ中央付近に見える溝は長さ 20  $\mu\text{m}$  以上、幅が両端、中央部でそれぞれ 0.7  $\mu\text{m}$ 、0.6  $\mu\text{m}$ 、0.6  $\mu\text{m}$ 、深さが両端、中央部でそれぞれ 19 nm であり、かつ溝の長手方向がほぼ延伸方向に垂直であった。また、このフィルム表面の反対面についても、同様な溝が存在することを確認した。

また、このフィルム 2 の内部を倍率 400 倍の光学顕微鏡を用いて観察した。



その像を図 1 1 に示す。遅相軸である延伸軸（図の左右方向）にほぼ垂直方向に延びた微小な光学的暗孔が多数観測されることが分かった。

さらに、このフィルム 2 の熱的耐久試験を実施例 1 と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

また、このフィルム 2 の両表面に、実施例 1 と同様に  $4\text{ }\mu\text{m}$  の光硬化膜を形成し、上記光学特性を測定したが、ほぼ表 1 と同様の光学特性を得た。

このフィルム 2 を透明な厚さ  $2\text{ mm}$  のガラス板上に粘着剤を介して貼り合わせた。そのガラスを通して景色を眺めると、フィルム法線方向から見ると曇って景色がよく見えないが、延伸方向に角度を変えていくと角度に応じて段々と透明になり、景色が見やすくなった。

### 〔実施例 3〕

実施例 1 と同様にして幅  $15\text{ cm}$ 、膜厚  $75\text{ }\mu\text{m}$  からなる表 1 に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は  $119^{\circ}\text{C}$  であった。

この透明未延伸フィルムを用い、実施例 1 で用いた延伸機を用いて表 1 に示す延伸条件にて縦一軸延伸を実施し、目的のフィルム 3 を得た。

こうして得られたフィルム 3 の光学特性を表 1 に示す。

このフィルム 3 に対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ多数の空孔を有することを確認した。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の  $20\text{ }\mu\text{m}$  四方を測定した像を図 1 2 に示す。図の左右方向が延伸方向である。図 1 2 から溝が数本観測され、そのうち図 1 2 のほぼ中央付近に見える溝は長さ  $12\text{ }\mu\text{m}$  以上、幅が両端、中央部でそれぞれ  $5\text{ }\mu\text{m}$ 、 $4\text{ }\mu\text{m}$ 、 $6\text{ }\mu\text{m}$ 、深さが両端、中央部でそれぞれ  $50\text{ nm}$ 、 $40\text{ nm}$ 、 $80\text{ nm}$  であり、かつ溝の長手方向がほぼ延伸方向に垂直であった。また、このフィルム表面の反対面についても同様な溝が存在することを確認した。

また、このフィルム 3 の内部を倍率  $400$  倍の光学顕微鏡を用いて観察した。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた、微小な光学的暗孔が多数観測された。

さらに、このフィルム 3 の熱的耐久試験を実施例 1 と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

また、このフィルム 3 の両表面に対し、実施例 1 と同様に  $4\ \mu\text{m}$  の光硬化膜を形成し、上記光学特性を測定したが、ほぼ表 1 と同様の光学特性を得た。

このフィルム 3 を透明な厚さ  $4\ \text{mm}$  のアクリル板上に、粘着剤を介して貼り合わせた。そのガラスを通して景色を眺めると、法線方向から見ると疊って景色がよく見えないが、延伸方向に角度を変えていくと角度に応じて段々と透明になり、景色が見やすくなるのが確認された。

#### 〔実施例 4〕

実施例 1 と同様に幅  $15\ \text{cm}$ 、膜厚  $75\ \mu\text{m}$  で、表 1 に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は  $119^\circ\text{C}$  であった。

この透明未延伸フィルムを用い、実施例 1 で用いた延伸機を用いて表 1 に示す延伸条件にて縦一軸延伸を実施し、目的のフィルム 4 を得た。

こうして得られたフィルム 4 の光学特性を表 1 に示す。

このフィルム 4 に対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ微細な多数の空孔が見られた。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の  $2.0\ \mu\text{m}$  四方を測定した。溝の長さとの幅の比が  $1.5$  以上である溝が複数存在しており、かつ溝の長手方向の方向分布が  $\pm 10^\circ$  以内であった。また、このフィルム表面の反対面についても、同様な溝が存在した。

また、このフィルム 4 の内部を倍率  $400$  倍の光学顕微鏡で観察した。その像を図 13 に示す。図の左右方向が延伸方向である。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた、微小な光学的暗孔が多数観測された。

さらに、このフィルム 4 の熱的耐久試験を実施例 1 と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

また、このフィルム 4 の両表面に実施例 1 と同様に  $4\ \mu\text{m}$  の光硬化膜を形成し、上記光学特性を測定したが、ほぼ表 1 と同様の光学特性を得た。

さらにこのフィルム 4 を、富士通（株）製のノートブック型パーソナルコン

ピュータ（商品名「FMV-575NU/Y」）に付随するSTN（スーパーツイストネマチック）モードの液晶表示装置に、該フィルムの延伸軸を画面の縦方向にして、粘着層を介して偏光フィルム上に1枚貼り合わせた。すなわち、観測者側のガラス基板には、位相差フィルム／粘着層／偏光フィルム／粘着層／フィルム4から構成される積層楕円偏光フィルムが粘着層を介して貼り合わされている構造となっている。この装置の画面を目視により観測したところ、画面横方向の視野角は装着前とほぼ同様であるが、上下方向において階調反転及び黒つぶれの生じない領域が拡大することが確認された。下方向の方がより効果が大きかったことが分かった。さらに大塚電子（株）製液晶表示装置評価装置（商品名「LCD5100」）を用いてフィルム4の正面光強度（Y）を測定したところ、該フィルム4が未装着のときの光強度を100%とした場合、93%であった。

また、該フィルム4を、延伸軸を画面の横方向として貼り合わせた場合には、上下方向の視野角は装着前とほぼ同様であるが、左右方向においては階調反転及び黒つぶれの生じない領域が拡大することが確認された。さらに大塚電子（株）製液晶表示装置評価装置（商品名「LCD5100」）にこのフィルム4を用いて、正面光強度（Y）及び左右方向のコントラスト変化を測定したところ、該フィルムが未装着の場合の光強度を100%とした場合、装着した場合は97%であった。一方、コントラスト2以上の領域は未装着の場合、左右で90°（左右それぞれ45°）であるのに対して、装着した場合は左右120°以上（左右それぞれ60°以上）であった。

さらに、TAC（トリアセチルセルロース）フィルム上に反射防止層を付けたフィルムを上記フィルム4上に粘着層を介して貼り合わせたところ、表面による反射が抑えられ、さらに視認性が向上することが確認された。この場合、観測者側のガラス基板には、位相差フィルム／粘着層／偏光フィルム／粘着層／本発明のフィルム4／粘着層／TACフィルム／反射防止層から構成させる反射防止層付き積層楕円偏光フィルムが粘着層を介して貼り合わせている構造となっている。

なお、反射防止層の形成は以下のように行った。光重合開始剤（チバガイギー社製のイルガキュアー184）を3重量%含むポリエステルアクリレート系

モノマー（東亜合成（株）製M309）を、溶剤として1-メトキシ-2-プロパノールに溶解した溶液を準備した。これを上記フィルム4の両表面に塗布し乾燥後、窒素雰囲気下にて紫外線を照射して該フィルム表面に4  $\mu$ mの光硬化膜を形成させた。次にスパッタ法を用いて光硬化膜上に順番にITO（屈折率2.0、膜厚240Å）/SiO<sub>2</sub>（屈折率1.46、膜厚240Å）/ITO（酸化インジウム錫、屈折率2.0、膜厚870Å）/SiO<sub>2</sub>（屈折率1.46、膜厚910Å）からなる多層膜を形成して反射防止層を作製した。

また、このフィルム4の片側の表面に微細な凹凸を設けたいわゆる防眩処理層を形成させた。このフィルムを、延伸軸を画面の横方向とし、粘着層を介し、防眩処理層側を観測者側にして先述の液晶表示装置に貼り合わせたところ、画面の表面による鏡面状の反射が抑えられ、さらに視認性が向上することが確認された。なお、防眩処理層の形成は以下の様に行った。トリメチロールプロパンエチレンオキサイド変性アクリレート（東亜合成化学社製、商品名「アロニックスM-350」）100重量部、光重合開始剤1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（チバガイギー社製、商品名「イルガキュアー184」）7重量部、平均粒子径4.5  $\mu$ mのシリコン樹脂微粒子（東芝シリコン社製、商品名「トスパール145」）0.1重量部、1-メトキシ-2-プロパノール200重量部を混合した溶液を該フィルムにロールコーティングした後、60℃1分乾燥した。ついで120mW/cm<sup>2</sup>の高圧水銀灯を用いて積算光量約800mJ/cm<sup>2</sup>の条件で光照射して、膜厚が約3.5  $\mu$ mの防眩処理層を形成した。

#### 〔実施例5〕

溶融製膜法により、ポリエチレンナフタレートからなる幅30cm、膜厚90  $\mu$ mで、表1に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。このポリエチレンナフタレート樹脂の粘度平均分子量は20000であった。このフィルムを幅20mm、長さ80mmに切り出し、図14の模式図に示すように、恒温槽の中で片側のフィルムを固定し、もう一方の端を金属クリップで引っ張り、表1に記載の条件で縦一軸延伸を実施した。図14で60は熱可塑性高分子フィルム、61は移動チャック、62は固定チャック、63はチャック移動方向を表す。

こうして得られた本発明のフィルム 5 の光学特性を表 1 に示す。

このフィルム 5 に対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察をしたところ微細な多数の空孔を有することを確認した。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の  $20\ \mu\text{m}$  四方を測定した。溝の長さとの幅の比が  $1.5$  以上である溝が複数存在しており、かつ溝の長手方向の方向分布が  $\pm 10^\circ$  以内である溝が見られた。また、このフィルム表面の反対面についても同様な溝が存在することを確認した。

また、このフィルム 5 の内部を倍率  $400$  倍の光学顕微鏡で観察した。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた、微小な光学的暗孔が多数観測された。

さらに、このフィルム 5 の熱的耐久試験を実施例 1 と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

また、このフィルム 5 の両表面に対し、実施例 1 と同様に  $4\ \mu\text{m}$  の光硬化膜を形成し、上記光学特性を測定したが、ほぼ表 1 と同様の光学特性を得た。

#### 〔実施例 6〕

実施例 1 と同様に幅  $23\ \text{cm}$ 、膜厚  $75\ \mu\text{m}$  で、表 1 に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は  $119^\circ\text{C}$  であった。

この透明未延伸フィルムを用い、実施例 1 で用いた延伸機を用いて表 1 に示す延伸条件にて縦一軸延伸を実施し、目的のフィルム 6 を得た。

こうして得られたフィルム 6 の光学特性を表 1 に示す。また、実施例 1 と同様に図 4 の光学系で測定した平行光線透過率の  $R$ 、 $\theta$  依存性を図 15 に示す。

このフィルム 6 に対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ微細な多数の空孔を有することを確認した。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の  $20\ \mu\text{m}$  四方を測定した。その像から該フィルムの延伸方向に垂直な溝が観測された。溝は長さ  $15\ \mu\text{m}$ 、幅が両端、中央部でそれぞれ  $9\ \mu\text{m}$ 、 $9\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \mu\text{m}$ 、深さが両端、中央部でそれぞれ  $50\ \text{nm}$ 、 $50\ \text{nm}$ 、 $70\ \text{nm}$  であり、かつ長手方向がほぼ延伸方向に垂直方向である溝が見られた。また、このフィル

ム表面の反対面についても同様な溝が存在した。

また、本フィルムを倍率400倍の光学顕微鏡を観察した。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた微小な光学的暗孔が多数観測された。

さらに、フィルム6の熱的耐久試験を実施例1と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

次にこのフィルム6の片側にリファレンスと同様な金属膜をスパッタ法により積層し、目的の反射フィルム（フィルム6／ステンレス／アルミニウムの積層体）を作製した。図16の光学系にて測定した相対反射率の入射角依存性を図17、18に示す。光はポリカーボネート側（フィルム6側）から入射した。本発明のフィルム6の延伸方向を $c = 0, 180^\circ$ とした。図17、18でフィルム法線方向を $0^\circ$ として入射角 $a^\circ$ を負の角度で表し、反射角 $b^\circ$ を正の値で表した。図17では光源、測定点、検出器で作られる反射フィルムに垂直な平面と反射フィルムとの交線が $c = 0, 180^\circ$ の方向と平行である場合で、図18では該交線が $c = \pm 90^\circ$ の方向と平行である場合の測定結果である。図17、18から判るように、相対反射率が入射方向（ $c^\circ$ ）によって大きく異なることが判った。図17、18ではそれぞれ $c = 0^\circ, 90^\circ$ の場合のみ記したが、それぞれ $c = 0^\circ$ と $c = 180^\circ$ 、 $c = 90^\circ$ と $c = -90^\circ$ は同様の結果となる。

さらにこの反射フィルムを、反射型液晶表示装置が用いられているシャープ株式会社製の携帯コンピュータ（商品名「ザウルスPI-6000」）の裏面反射フィルムとして用い、室内にて蛍光灯を点灯させて観察した。法線方向（画面の正面）より観察しても反射フィルムによる液晶表示装置の外側の背景の映り込みが気にならなかった。そして、この反射フィルムの貼り合わせ角度を適当に調整することにより、用途に応じて、見る方向によって明るさを制御可能な反射型液晶表示装置が得られることが判った。

#### 【実施例7】

実施例6で用いた透明未延伸フィルムを、実施例1で用いた延伸機を用いて表1に示す延伸条件にて縦一軸延伸を実施し、目的のフィルム7を得た。

こうして得られたフィルム7の光学特性を表1に示す。また、実施例1と同様に図4の光学系で測定した平行光線透過率の $R, \theta$ 依存性を図19に示す。



また、図5の光学系を用いて、平行光線をフィルム表面の法線方向から入射した場合、平行光線の進む方向を中心に回転させた角度を $\alpha = 0, 90, -90, 180^\circ$ とし、出射散乱光と法線とのなす角 $\beta$  ( $^\circ$ )として、 $0^\circ$ から $60^\circ$ まで変化させたときの散乱光の強度分布を図20に示す。延伸方向は $\alpha = 0, 180^\circ$ 方位である。図20より、例えば $\beta = 10^\circ$ のとき $\alpha = 90^\circ$ であれば散乱光強度はほぼ0%であるが、 $\alpha = 0^\circ$ であれば散乱光強度7%であり、光散乱する方向に角度依存性を有することが分かった。なお、図20では $\alpha = 0, 90^\circ$ のとき $\beta$ を正の値で表し、一方、 $\alpha = -90, 180^\circ$ のとき $\beta$ を負の値で表した。

このフィルム7を室内のガラス窓に粘着剤を用いて貼り合わせたところ、 $\alpha = 0^\circ, 180^\circ$ 方位には外光を強く散乱するものの、 $\alpha = \pm 90^\circ$ 方位では非常に弱い散乱となり、本発明のフィルムの特異的な散乱強度分布を利用して室内の外光の取り入れかたを制御できることが示された。

このフィルム7に対して、実施例1と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ微細な多数の空孔が見られた。

実施例1と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の $20\mu\text{m}$ 四方を測定した。その像から延伸方向に垂直な溝が観測された。溝は長さ $20\mu\text{m}$ 、幅が両端、中央部でそれぞれ $4\mu\text{m}$ 、 $4\mu\text{m}$ 、 $6\mu\text{m}$ 、深さが両端、中央部でそれぞれ $40\text{nm}$ 、 $30\text{nm}$ 、 $40\text{nm}$ であった。そして溝の長手方向はほぼ延伸方向に垂直方向であった。また、このフィルム表面の反対面についても同様な溝が存在することを確認した。

また、このフィルム7を倍率400倍の光学顕微鏡で観察した。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた、透過光強度が相対的に低く暗部に見える微小な光学的暗部が多数観測された。

さらに、このフィルム7の熱的耐久試験を実施例1と同様に行ったが、試験後もほとんど特性に変化はなかった。

このフィルム7を、反射型液晶表示装置が用いられているシャープ株式会社製の携帯コンピュータ（商品名「ザウルスPI-6000」）において観測者から見て表面の偏光板上に粘着剤を介して貼り合わせ、前方散乱フィルムとし

て用いた。なお、このフィルム7上には防眩処理層が形成してあるものを用いた。この防眩処理層は以下のように形成された。トリメチロールプロパンエチレンオキサイド変成アクリレート（東亜合成化学社製の商品名「アロニックスM-350」）100重量部、光重合開始剤1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（チバガイギー社製、商品名「イルガキュアー184」）7重量部、平均粒子系4.5  $\mu\text{m}$ のシリコン樹脂微粒子（東芝シリコン社製、商品名「トスパール145」）0.1重量部、および1-メトキシ-2-プロパノール200重量部を混合した溶液を該フィルムにロールコーティングした後、60℃1分乾燥された。ついで、120  $\text{mW}/\text{cm}^2$ の高圧水銀灯を用いて積算光量約800  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ の条件で光照射し、膜厚が約3.5  $\mu\text{m}$ の防眩処理層を形成した。

また、上記反射型液晶表示装置から裏面の反射フィルムのみ剥がし、実施例6で作製したように、金属膜を形成させた反射フィルムを偏光板に貼り合わせた。ここで、この反射フィルムは流延製膜法によって作製したフィルム表面法線方向から入射した光で測定して全光線透過率91%、ヘーズ0.3%のポリカーボネートフィルム上に金属膜を積層したものである。このときの反射型液晶表示装置の構成はほぼ図21と同様である。図21で81は本発明のフィルム7、82は偏光板、83はガラスまたはプラスチック基板、84は透明電極、85は液晶層、86は透明電極、87はガラスまたはプラスチック基板、88は偏光板、89は反射板を示す。

室内にて蛍光灯を点灯させて画面を観察した。その画面の法線方向より観察しても反射フィルムによる液晶表示装置の外側の背景の映り込みが気にならず、かつ、前方散乱フィルム（フィルム7）の貼り合わせ角度を適当に調整することにより、用途に応じて、見る方向によって明るさを制御可能な反射型液晶表示装置が得られることが判った。

#### 〔実施例8〕

実施例1で用いたバックライトシステム上に、一方向に長い微細なプリズムからなるレンズシート（大日本印刷社製、商品名V7）を設置し、さらにその上に実施例6で作製したのと同様の本発明のフィルム6を設置した。その際、レンズシートのプリズム長手方向はパネル水平方向に平行に設置し、一方、こ

のフィルム 6 はその延伸軸がプリズム長手方向と直交するように設置した。レンズシート上にこのフィルム 6 を設置した場合の正面輝度を、設置しなかった場合の正面輝度を 100% として、大塚電子（株）製の液晶表示装置評価装置（商品名「LCD5100」）にて測定したところ、92% であることが分かった。次に、輝度の角度依存性を測定した。光量検出器とバックライトシステム上の測定点とで作られる直線とパネル法線とのなす角を  $\phi$  とし、それぞれ垂直、水平方向を測定した。なお、法線は  $\phi = 0^\circ$  とした。バックライト上にレンズシートを設置しただけの構成においては、垂直方向において、 $\phi$  が  $0^\circ \sim 60^\circ$  までは  $\phi$  の増加に伴い輝度は減少するが、 $\phi$  が  $70^\circ \sim 90^\circ$  付近になると再び輝度が著しく増加してしまい、表示品位が低下した。一方、このフィルム 6 をレンズシート上に設置した場合には、垂直方向において  $\phi$  の増加に伴い輝度が減少し、 $\phi$  が  $70^\circ \sim 90^\circ$  付近になっても輝度が増加することはない。

また、このフィルム 6 を含むバックライトシステム上に、日本電気（株）製のノート型パソコン（商品名「PC-9801NS/E」）に用いられている液晶表示駆動部を設置した。構成を図 22 に示す。正面輝度が向上しかつ、パネル垂直方向の  $\phi$  が  $70^\circ \sim 90^\circ$  付近になっても、輝度が増加することはない表示品位の高い液晶表示装置が得られた。図 22 で 90 は市販のバックライトシステム、91 は市販のレンズシート、92 は本発明のフィルム 6、93 は市販の液晶表示駆動部である。

#### 【実施例 9】

実施例 7 で作製した本発明のフィルム 7 を 1 辺 10 cm の正方形に切ったものを、屈折率をポリカーボネートとほぼ同様の値に調製されたアクリル系粘着剤（厚さ約  $10 \mu\text{m}$ ）を用いて延伸方向を揃えて 1000 枚貼り合わせた。多層フィルム A の厚みは約 50 mm となった。このフィルム A を図 23 に示すように、法線方向を  $0^\circ$  として斜め  $60^\circ$  かつ刃先を延伸方向に垂直にしてカッターを用いてスライスし、多層フィルム B を得た。図 23 で 100 は多層フィルム A、101 は切断面、102 は延伸方向を示す。こうして得られた多層フィルム B の実施例 1 と同様に図 4 の光学系で測定した平行光線透過率の  $R$ 、 $\theta$  依存性を図 24 に示す。なお、図 24 では  $R = 0^\circ$ 、 $\theta = -15^\circ$  のときを透

過率 100%と設定した。

〔実施例 10〕

実施例 1 と同様に幅 23 cm、膜厚 75  $\mu$ m で、表 1 に示す特性を有する透明未延伸フィルムを得た。また、このフィルムのガラス転移点温度は 88℃であった。

この透明未延伸フィルムを用い、実施例 1 で用いた延伸機を用いて表 1 に示す延伸条件にて縦一軸延伸を実施し、目的のフィルム 10 を得た。

こうして得られたフィルム 10 の光学特性を表 1 に示す。

この本発明のフィルムに対して、実施例 1 と同様にフィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察したところ微細な多数の空孔が見られた。

実施例 1 と同様に原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の 20  $\mu$ m 四方を測定した。溝の長さ a と幅 b の比  $a/b$  が 1.5 倍以上である溝が見られた。また、このフィルム表面の反対面についても同様な溝が存在することを確認した。

また、このフィルム 10 を倍率 400 倍の光学顕微鏡を用いて観察した。遅相軸である延伸軸にほぼ垂直方向に延びた、暗部に見える光学的微小空孔が多数観測された。

このフィルム 10 を透明な厚さ 4 mm のアクリル板上に、粘着剤を介して貼り合わせた。そのガラスを通して景色を眺めると、法線方向から見ると曇って景色がよく見えないが、延伸方向に斜めから見ると角度に応じて段々と透明になり、景色が見やすくなるのが確認された。

〔実施例 11〕

実施例 1 で作製した本発明のフィルム 1 の片側の面に光硬化樹脂膜をブレース状に形成した。光硬化樹脂膜の形成方法は、以下の通りである。まず、ブレース角 20°、ブレースピッチ 30  $\mu$ m のブレース状の金型を作成した。この金型とフィルム 1 の間に、光重合開始剤（チバガイギー社製、イルガキュアー 184）を 3 重量%含むポリエステルアクリレート系モノマー（東亜合成（株）製 M309）を挟持し、紫外線硬化させた後、金型を外すことによりフィルム 1 の片面上に作成した。次にブレース状表面上に、リファレンスと同様な金属

膜を作成し目的の反射フィルムを得た。このフィルムの断面模式図を図27に示す。図中、110は本発明の配向フィルム、111はブレース状光硬化樹脂膜、112は金属膜、113はブレースピッチ、114はブレース傾き角である。

さらにこの反射フィルムを、反射型液晶表示装置が用いられているシャープ株式会社製の携帯コンピュータ（商品名「ザウルスPI-6000」）の裏面反射フィルムとして用いて粘着剤を介して貼り合わせ、室内にて蛍光灯を点灯させて観察した。法線方向（画面の正面）より観察しても、この表示装置の最表面及び反射フィルムによる液晶表示装置の外側の背景の映り込みが気にならず、視認性が向上したことを確認した。

#### 〔比較例1〕

実施例1で用いた透明未延伸フィルムを、実施例1で用いた延伸機を用いて表1に示す延伸条件にて縦一軸延伸した。

こうして得られた延伸フィルムの光学特性を表1に示す。どの角度から見ても透明なフィルムであり、目的のフィルムは得られなかった。

原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の20 $\mu$ m四方を測定したところ、延伸によって生成した溝の存在は確認されなかった。

また、該フィルムに対して、フィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により倍率2000倍で観察を行った。実施例1等で見られたような空孔の存在は確認できなかった。

#### 〔比較例2〕

重量平均分子量200万のポリエチレン4.0重量%を含む流動パラフィン混合液100重量部に2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール0.125重量部とテトラキス〔メチレン-3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロピオネート〕メタン0.25重量部と酸化防止剤とを加えた。この混合液を攪拌機付きのオートクレーブに充填し、200℃まで加熱して90分間攪拌して均一な溶液を得た。この溶液を加熱した金型に充填し、10℃まで急冷して厚さ5mmのゲル状シートを成形した。このゲル状シートを塩化メチレン250ml中に50分間浸漬した。ついでゲル状シートが平滑な

ガラス基板に貼り付けた状態で塩化メチレンを蒸発乾燥し、流動パラフィン量が63重量%の原反シートを得た。得られた原反シート(10×10cm)を、チャック付きの2軸延伸機にセットし、温度130℃、速度10cm/分、倍率各5倍の条件で同時2軸延伸した。得られた延伸フィルムを塩化メチレンで洗浄して残留する流動パラフィンを抽出除去した後、乾燥してポリエチレンからなるフィルムを得た。このフィルムは白色で、不透明であった。

該フィルムの光学特性を表1に記す。

該フィルムに対して、フィルム表面に垂直でかつ延伸方向に平行に切った断面に対して走査型電子顕微鏡により観察した。空孔を多数有する構造であることが分かった。

原子間力顕微鏡にてこのフィルム表面における任意の20μm四方を測定したところ、延伸によって生成した溝の存在は確認されなかった。

このフィルムのヘーズ及び全光線透過率を測定したところ、それぞれ91.9%、28.8%であり、さらに平行光線透過率の角度依存性を測定したが、角度に依存して透過光の散乱性は変わらなかった。

#### 〔比較例3〕

反射型液晶表示装置が用いられているシャープ株式会社製の携帯コンピュータ(商品名「ザウルスPI-6000」)に使用されている反射フィルムの相対反射率を、実施例6と同様に測定した。画面上下方向を $c=0, 180^\circ$ とした。図25、26からわかるように、相対反射率が入射方向( $c^\circ$ )によって大きく異なることはないことが判った。また、該商品を見る方向によって輝度が増加することが少なかった。

#### 〔比較例4〕

実施例8の本発明のフィルムの代わりに、光拡散フィルム(商品名「D113T」(辻本電機製作所社製))を用いた。このフィルムはヘーズ90.2%、全光線透過率63.8%であった。レンズシート上に該光拡散フィルムを設置した場合の正面輝度を、設置しなかった場合の正面輝度を100%として、大塚電子(株)製の液晶表示装置評価装置(商品名「LCD5100」)にて測定したところ、80%であることが分かった。



表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 10	比較例 1	比較例 2
	PC	PC	PC	PC	PEN	PC	PC	PC	PC	PE
熱可塑性高分子 1)										
含有機溶媒 2)	なし	なし	4重量%	4重量%	なし	4重量%	4重量%	8重量%	0.1重量%	63重量%
フィルム	91.0	91.0	91.0	91.0	89.0	91.0	91.0	91.0	91.0	-
特性	0.3	0.3	0.3	0.4	0.7	0.3	0.3	0.3	0.3	-
Δn・d (nm)	10	15	5	5	20	10	10	10	10	-
膜厚 (μm)	75	125	75	75	90	75	75	100	75	-
1 段目延伸倍率	2.7	1.7	2.1	2.1	5.3	2.1	2.4	2.7	1.1	5
1 段目延伸温度 (℃)	153	145	104	102	70	103	103	62	157	130
2 段目延伸倍率	-	1.6	-	-	-	-	-	-	-	-
2 段目延伸温度 (℃)	-	143	-	-	-	-	-	-	-	-
T500 (%)	30.3	30.4	42.9	50.1	15.6	55.3	25.2	19.4	89.9	0.1
T1500 (%)	78.2	78.0	46.7	54.1	86.4	53.1	76.1	81.6	92.8	0.3
T1500/T500	2.58	2.57	1.09	1.08	5.54	0.96	3.02	4.21	1.03	3
フィルム	90.5	89.9	88.7	89.7	71.6	90.0	89.9	90.4	91.0	28.8
特性	54.6	56.9	49.0	40.7	59.0	40.2	62.7	69.6	0.3	91.9
Δn・d (nm)	2300	3700	1600	1700	3000以上	1600	1900	2600	400	-
膜厚 (μm)	38.2	66.1	40.2	40.7	41	41.0	40.0	40	69.5	-
Tmin (%)	15.9	10.8	0.8	1.0	13.1	2.3	8.6	8.7	82.2	-
θ min (°)	22	7	60	60	5	60	7	10	60	-
Tmax (%)	44.6	40.7	36.2	43.7	30.0	46.1	50.7	57.3	89.5	-
θ max (°)	60	60	0	0	30	0	60	60	0	-

1) PC:ポリカーボネート、PEN:ポリエチレンナフタレート、PE:ポリエチレン  
2) M:メチレンクロライド、P:流動パラフィン

### 産業上の利用可能性

以上のように、本発明の角度に依存して光散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルムは、特定の方向から入射した光を散乱させる機能を有する。この特性を利用して、例えば液晶表示装置の前面に設置して使用することにより、視野角改善フィルムとして用いることができる。また、かかるフィルムに金属膜を積層した反射フィルムとして使用することにより、視野角に優れた反射型液晶表示装置を与えることができる。

また、本発明の配向フィルムをガラス板に貼ることにより、視野角を制御する特性のガラス板を提供することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 熱可塑性高分子からなり、かつ内部に微細な多数の空孔を含有する、角度に依存して透過光の散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルム。

2. フィルム表面に平行な平面内において、ほぼ均一に分散し、該フィルムの配向方向に垂直に向き、かつ幅が0.05～40μmである微小な光学的暗孔が含有された、請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

3. 配向フィルムが、下記式 (I) または (II)

$\theta_{\min} < \theta_{\max}$  のときは

$$T_{\max}/T_{\min} > 1.5 \quad \dots (I)$$

$\theta_{\min} > \theta_{\max}$  のときは

$$\{T_{\max} \times \cos(\theta_{\min})\} / \{T_{\min} \times \cos(\theta_{\max})\} > 1.5 \quad \dots (II)$$

ここで、光線入射方向とフィルム表面の法線とのなす角を $\theta$  (°)、その法線を回転中心としたフィルム面上での回転角を $R$  (°)、最小の平行光線透過率を $T_{\min}$  (%)、そのときの入射角 $\theta_{\min}$  (°)、最大の平行光線透過率を $T_{\max}$  (%)、そのときの入射角 $\theta_{\max}$  (°)とし、 $0^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$  かつ  $-180^\circ < R \leq 180^\circ$  の範囲である、  
を満足する回転角 $R$  (°) を含有する、請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

4. フィルムの配向方向に平行でかつフィルムの垂直な平面内において、配向フィルムが、下記式 (I) または (II)

$\theta_{\min} < \theta_{\max}$  のときは

$$T_{\max}/T_{\min} > 1.5 \quad \dots (I)$$

$\theta_{\min} > \theta_{\max}$  のときは

$$\{T_{\max} \times \cos(\theta_{\min})\} / \{T_{\min} \times \cos(\theta_{\max})\} > 1.5 \quad \dots (II)$$

ここで、光線入射方向とフィルム表面の法線とのなす角を $\theta$  ( $^{\circ}$ )、最小の平行光線透過率を $T_{\min}$  (% )、そのときの入射角 $\theta_{\min}$  ( $^{\circ}$ )、最大の平行光線透過率を $T_{\max}$  (% )、そのときの入射角 $\theta_{\max}$  ( $^{\circ}$ ) とし、 $0^{\circ} \leq \theta \leq 60^{\circ}$  の範囲である、

を満足する請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

5. 波長590nmにおけるリターデーションの大きさが50nm以上である請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

6. 波長500nmと1500nmにおけるフィルムの平行光線透過率を、それぞれ $T_{500}$  (% )、 $T_{1500}$  (% )とした場合、下記式(III)及び(IV)

$$0.5 \leq T_{1500} / T_{500} \leq 3.0 \quad \dots (III)$$

$$3\% \leq T_{500} (\%) \leq 85\% \quad \dots (IV)$$

を満たす請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

7. 熱可塑性高分子がポリカーボネートである請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

8. ガラス基板が積層されている請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

9. 透明ポリマーからなる層が積層されている請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

10. 金属からなる層が積層されている請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

11. 反射膜が積層されている請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

12. 偏光フィルムおよび位相差フィルムが積層されている請求項1記載の空孔を有する配向フィルム。

13. 熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるように一軸延伸することによって製造される、角度に依存して透過光の散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルム。
14. 熱可塑性高分子からなるフィルムを、該フィルムの表面に延伸方向に対して垂直方向に溝が生じるように一軸延伸する、角度に依存して、空孔を有する配向フィルムの製造方法。
15. 一軸延伸工程において、 $T_g' - 50$  (°C)  $\sim T_g'$  の温度範囲、かつネックイン率が25～70%の範囲内で延伸する、請求項14に記載の空孔を有する配向フィルムの製造方法。（ただし、 $T_g'$  は熱可塑性高分子からなるフィルムのガラス転移温度である）
16. 熱可塑性高分子からなるフィルムが、流延製膜法で作られたものであり、かつ該流延製膜で用いた溶媒を15重量%以下で含有する、請求項14に記載の空孔を有する配向フィルムの製造方法。
17. 熱可塑性高分子がポリカーボネートである請求項14に記載の空孔を有する配向フィルムの製造方法。
18. 熱可塑性高分子を製膜し、ついで一軸延伸することからなる、角度に依存して、空孔を有する配向フィルムの製造方法。
19. 請求項1に記載の空孔を有する配向フィルムからなる光散乱性制御フィルム。
20. 請求項1に記載の空孔を有する配向フィルムと金属膜からなる反射フィルム。

2 1. 金属膜がブレース状である請求項 2 0 に記載の反射フィルム。

2 2. 請求項 1 記載の空孔を有する配向フィルムと偏光フィルムとからなる積層フィルム。

2 3. 請求項 1 記載の空孔を有する配向フィルム、偏光フィルムおよび位相差フィルムとからなる積層フィルム。

2 4. 請求項 1 に記載の空孔を有する配向フィルムを、液晶表示装置の液晶層に対して観測者側に設置してなる液晶表示装置。

2 5. 液晶表示装置の液晶層に対して観測者側に配置された偏光フィルムの観測者側に、熱可塑性高分子からなり、内部に微細な多数の空孔を含有し、かつ下記式 (I) または (II)

$\theta_{\min} < \theta_{\max}$  のときは

$$T_{\max}/T_{\min} > 1.5 \quad \dots (I)$$

$\theta_{\min} > \theta_{\max}$  のときは

$$\{T_{\max} \times \cos(\theta_{\min})\} / \{T_{\min} \times \cos(\theta_{\max})\} > 1.5 \quad \dots (II)$$

ここで、光線入射方向とフィルム表面の法線とのなす角を  $\theta$  ( $^{\circ}$ )、その法線を回転中心としたフィルム面上での回転角を  $R$  ( $^{\circ}$ )、最小の平行光線透過率を  $T_{\min}$  (% )、そのときの入射角  $\theta_{\min}$  ( $^{\circ}$ )、最大の平行光線透過率を  $T_{\max}$  (% )、そのときの入射角  $\theta_{\max}$  ( $^{\circ}$ ) とし、 $0^{\circ} \leq \theta \leq 60^{\circ}$  かつ  $-180^{\circ} < R \leq 180^{\circ}$  の範囲である、

を満足する回転角  $R$  ( $^{\circ}$ ) を有する、角度に依存して透過光の散乱性が変化する、空孔を有する配向フィルムが配置された液晶表示装置。

2 6. 請求項 1 に記載の空孔を有する配向フィルムを設置してなる反射型液晶表示装置。



27. 請求項1に記載の空孔を有する配向フィルムを、液晶表示装置のバックライトシステムにおける光散乱性フィルムとして設置してなる液晶表示装置。

28. 請求項1に記載の空孔を有する配向フィルムの液晶表示装置への使用。

29. 請求項1に記載の空孔を有する配向フィルムの視野角改善フィルムへの使用。

1 / 20

Fig. 1

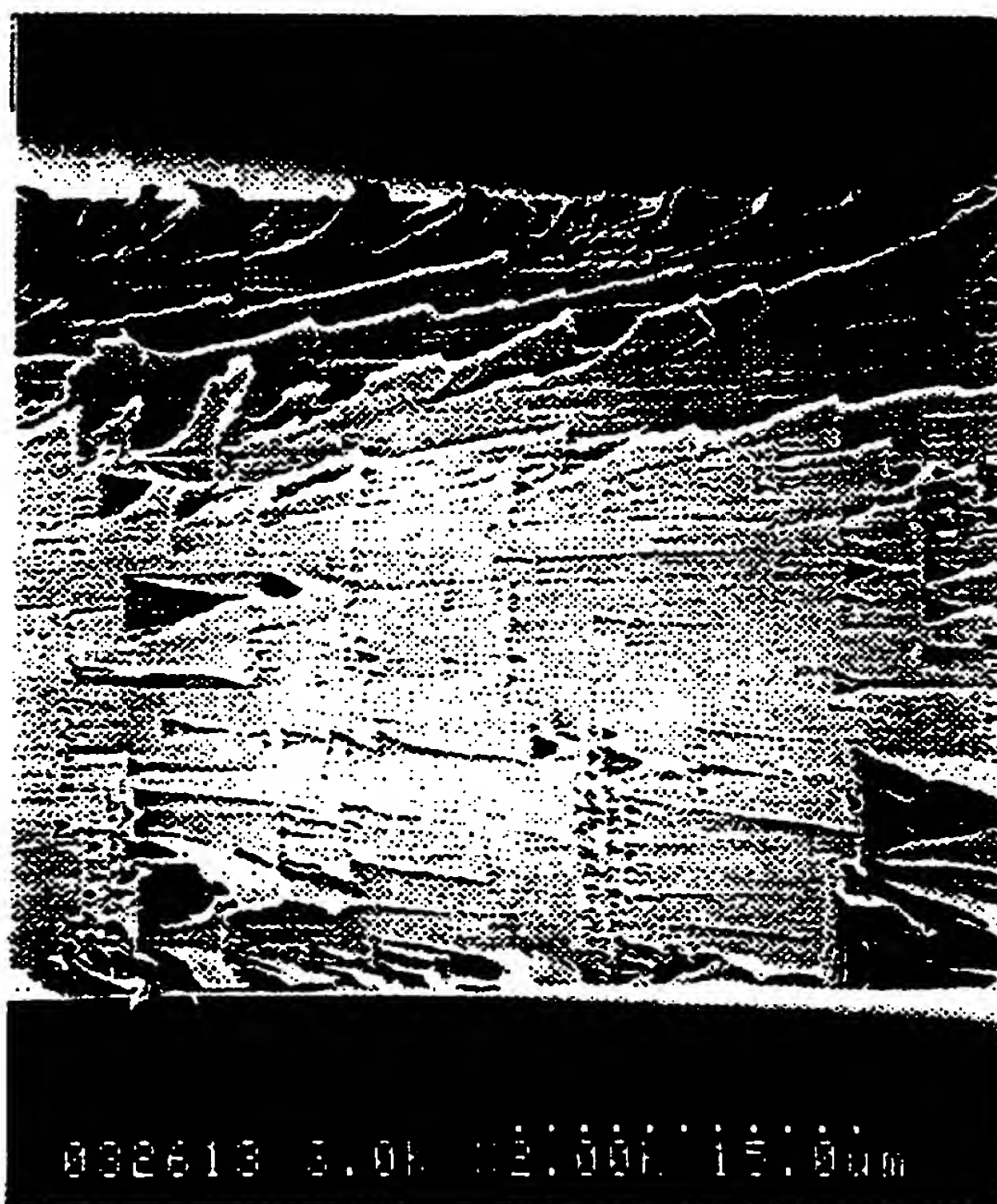
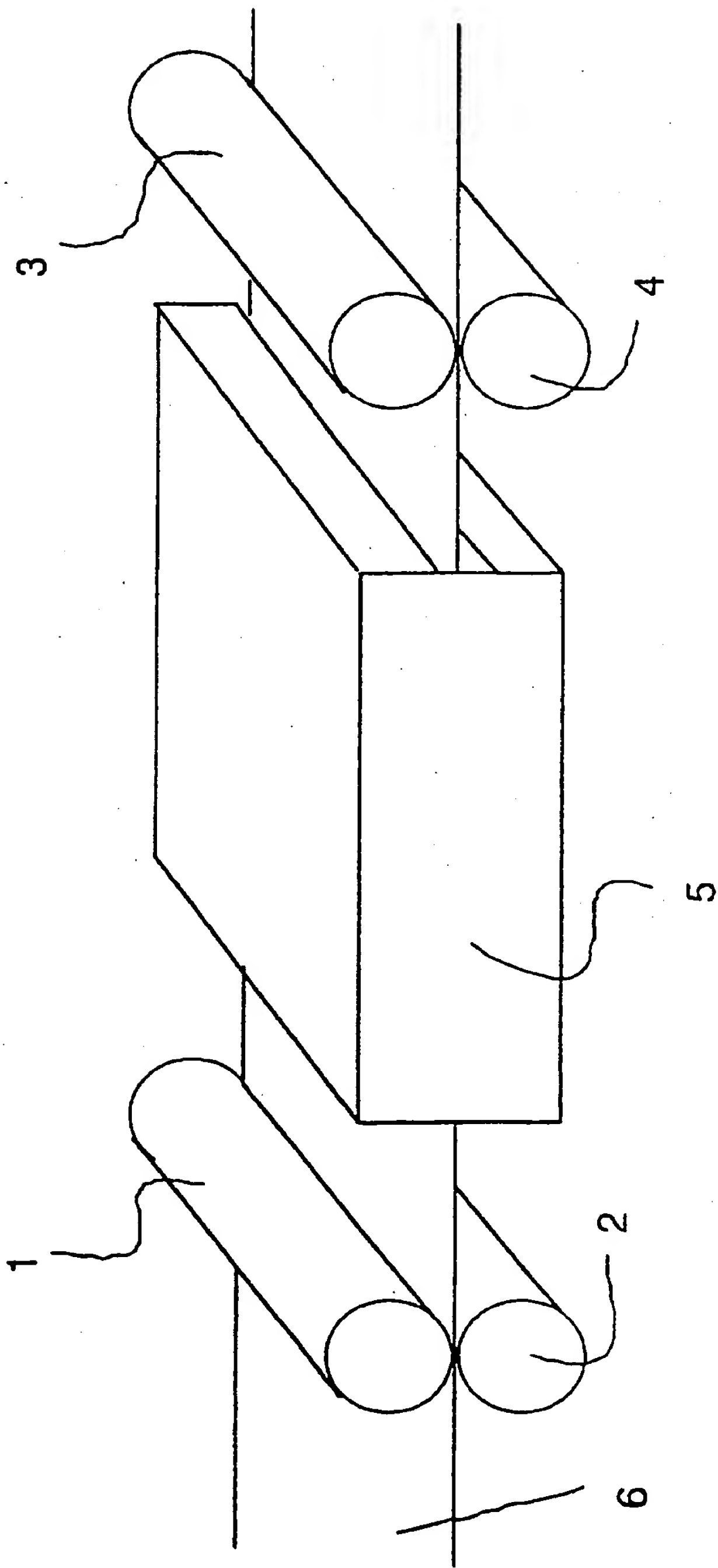
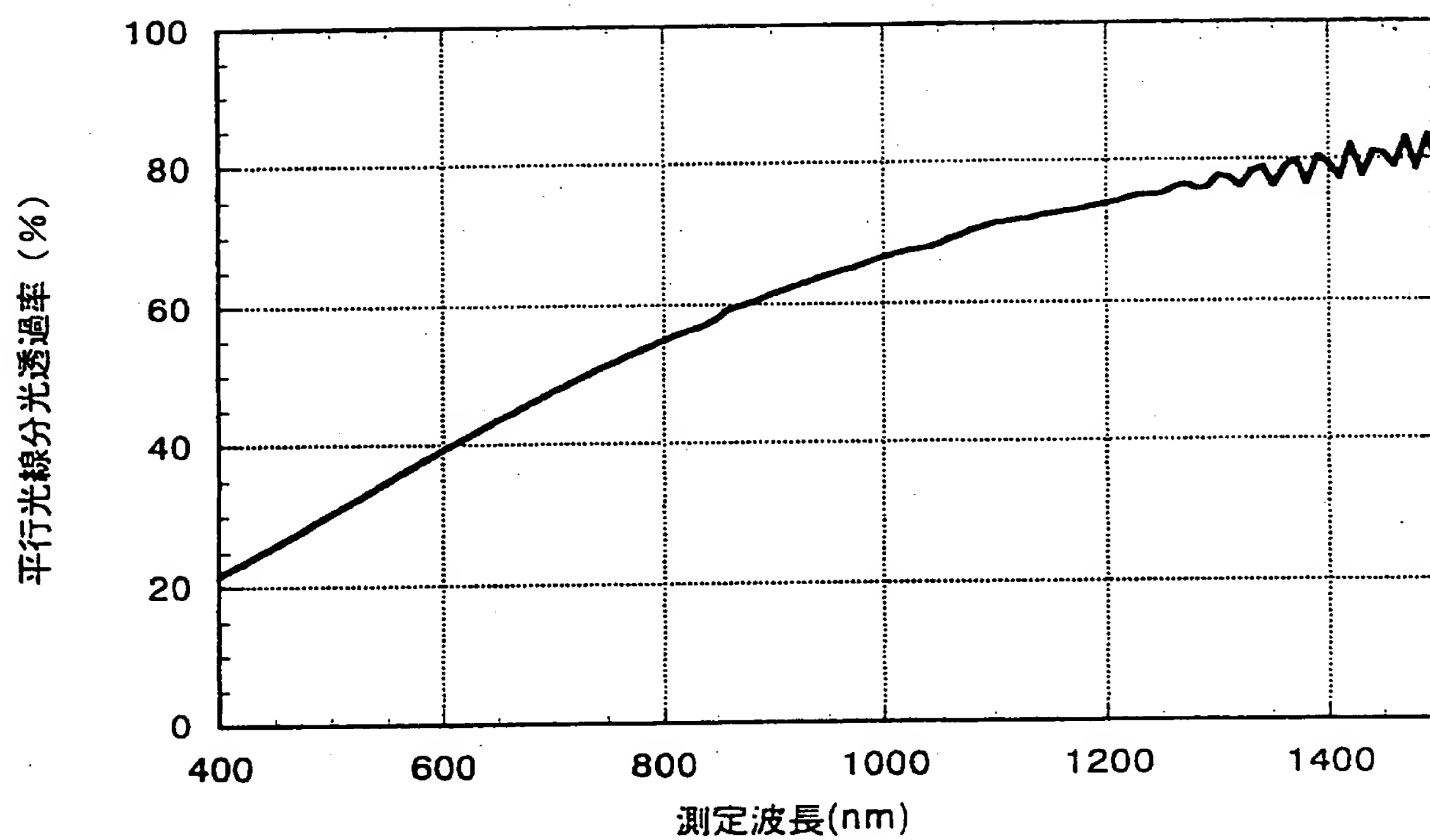


Fig. 2



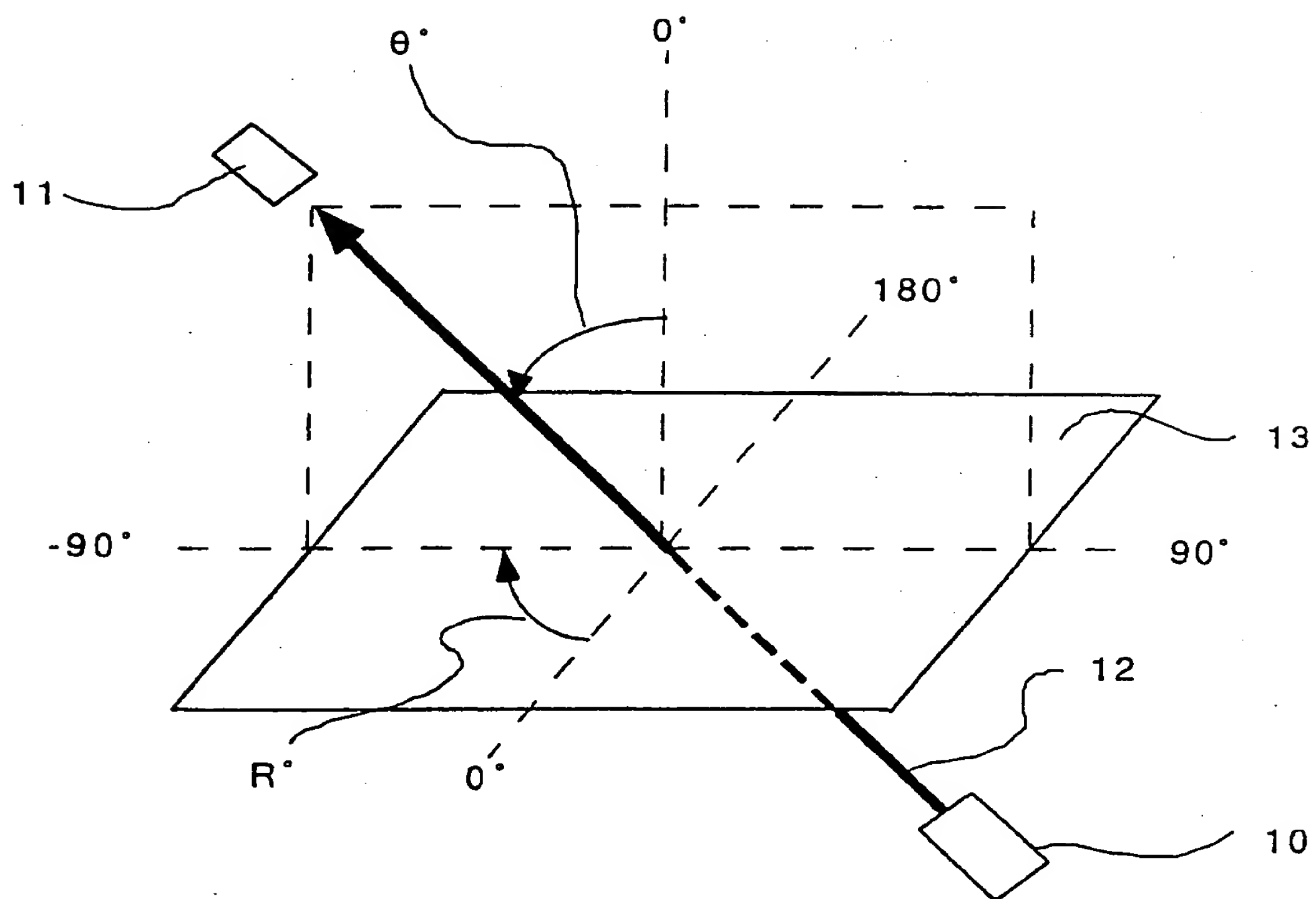
3/20

Fig. 3



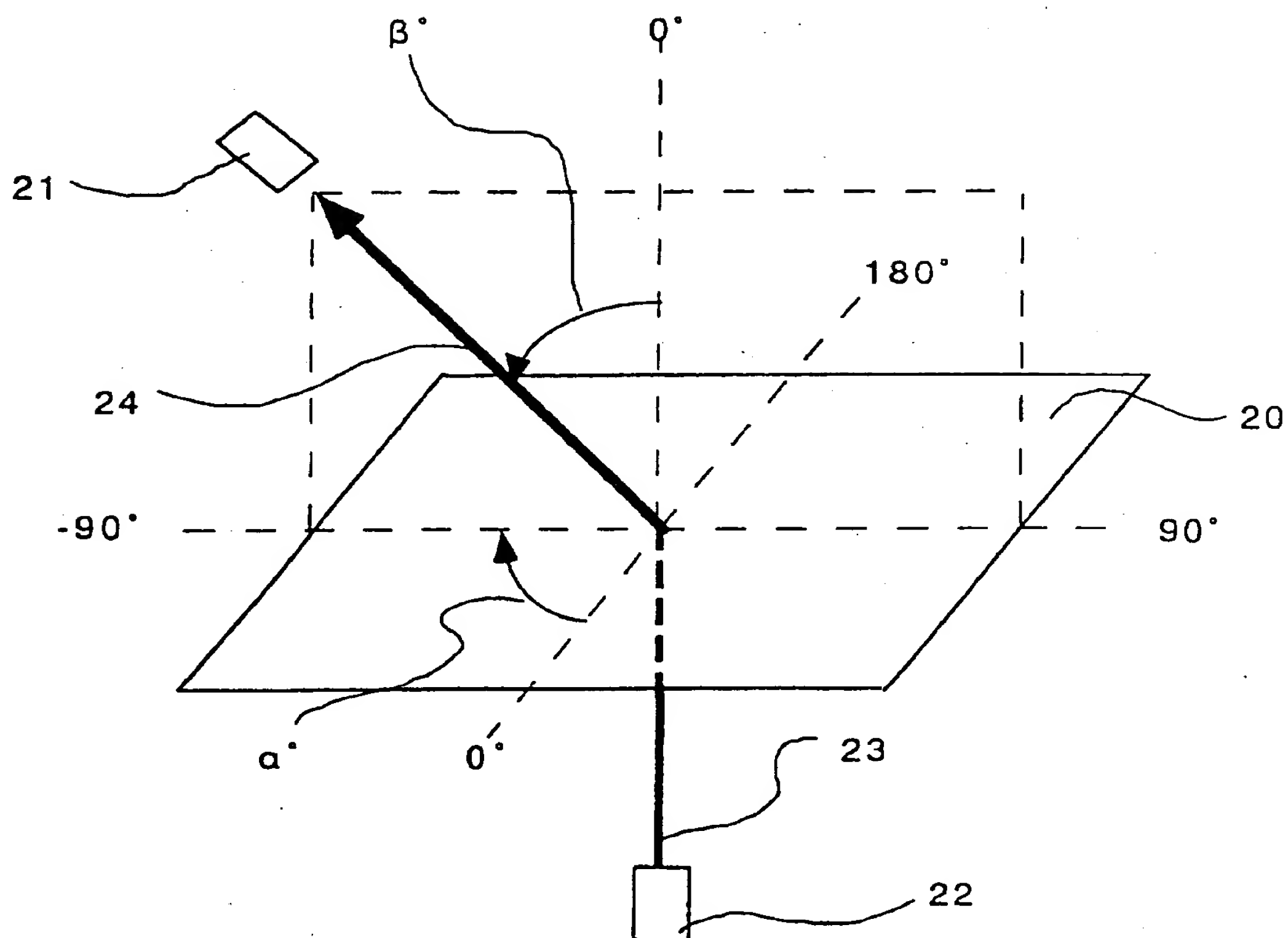
4/20

Fig. 4



5/20

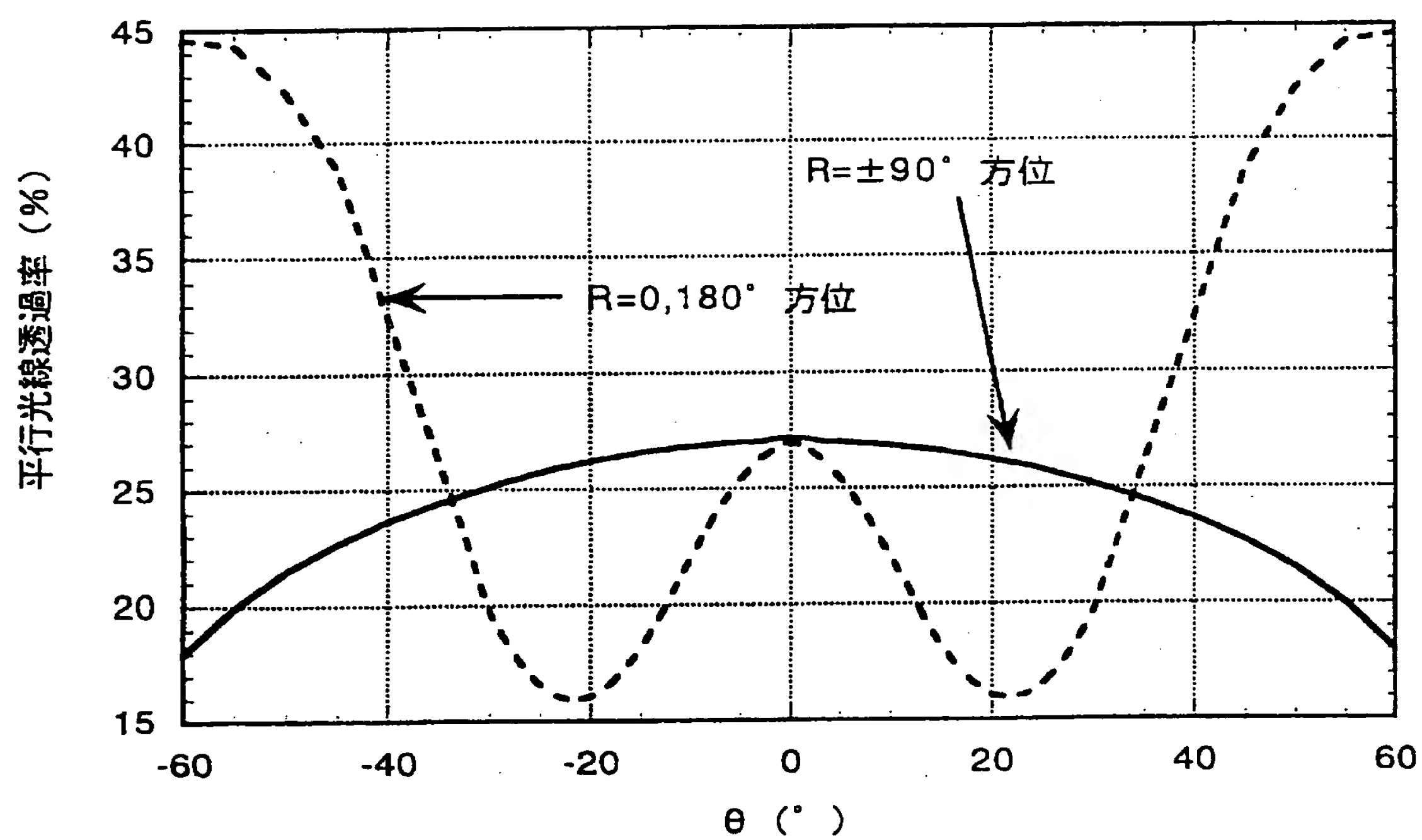
Fig. 5





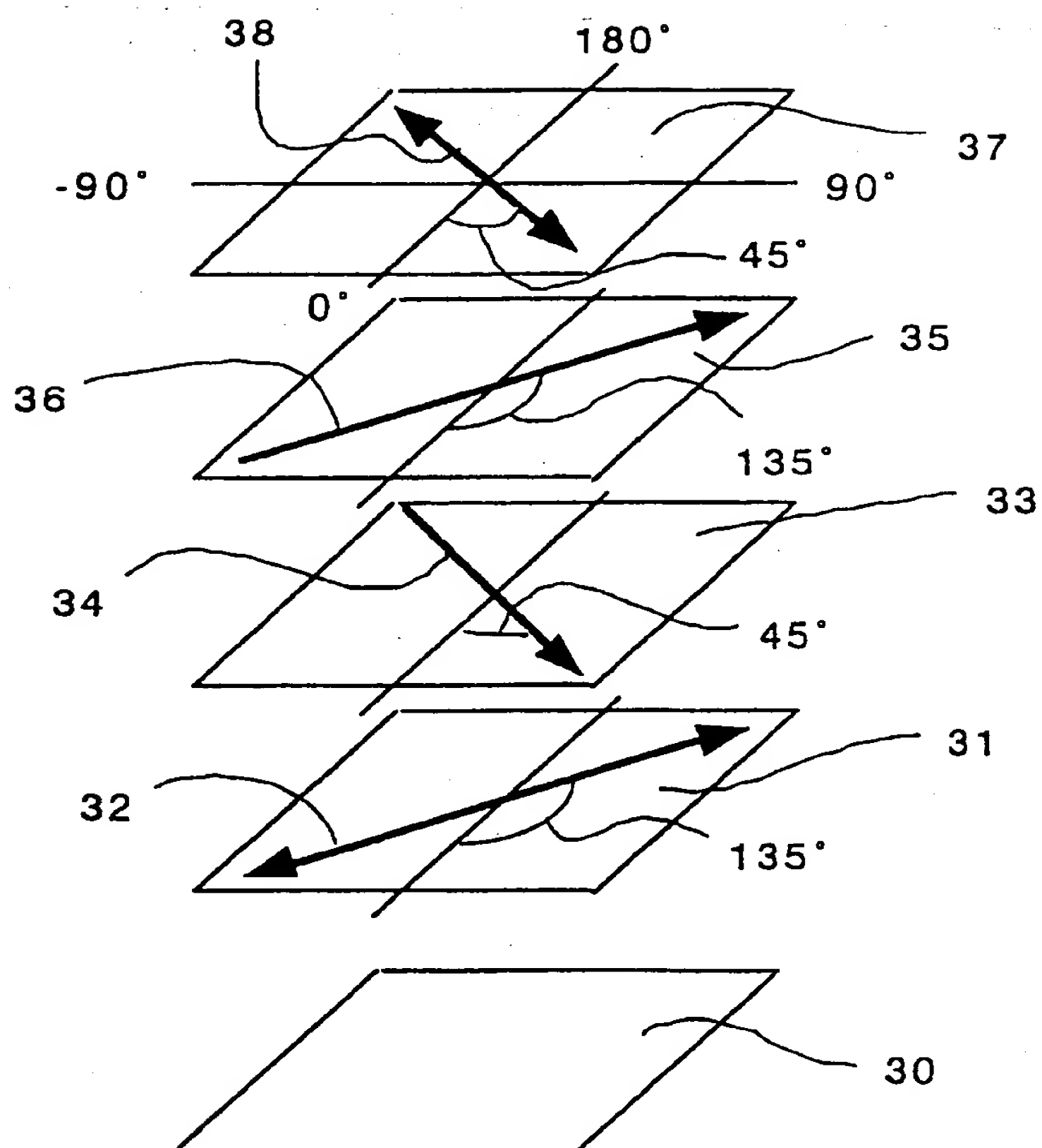
6/20

Fig. 6



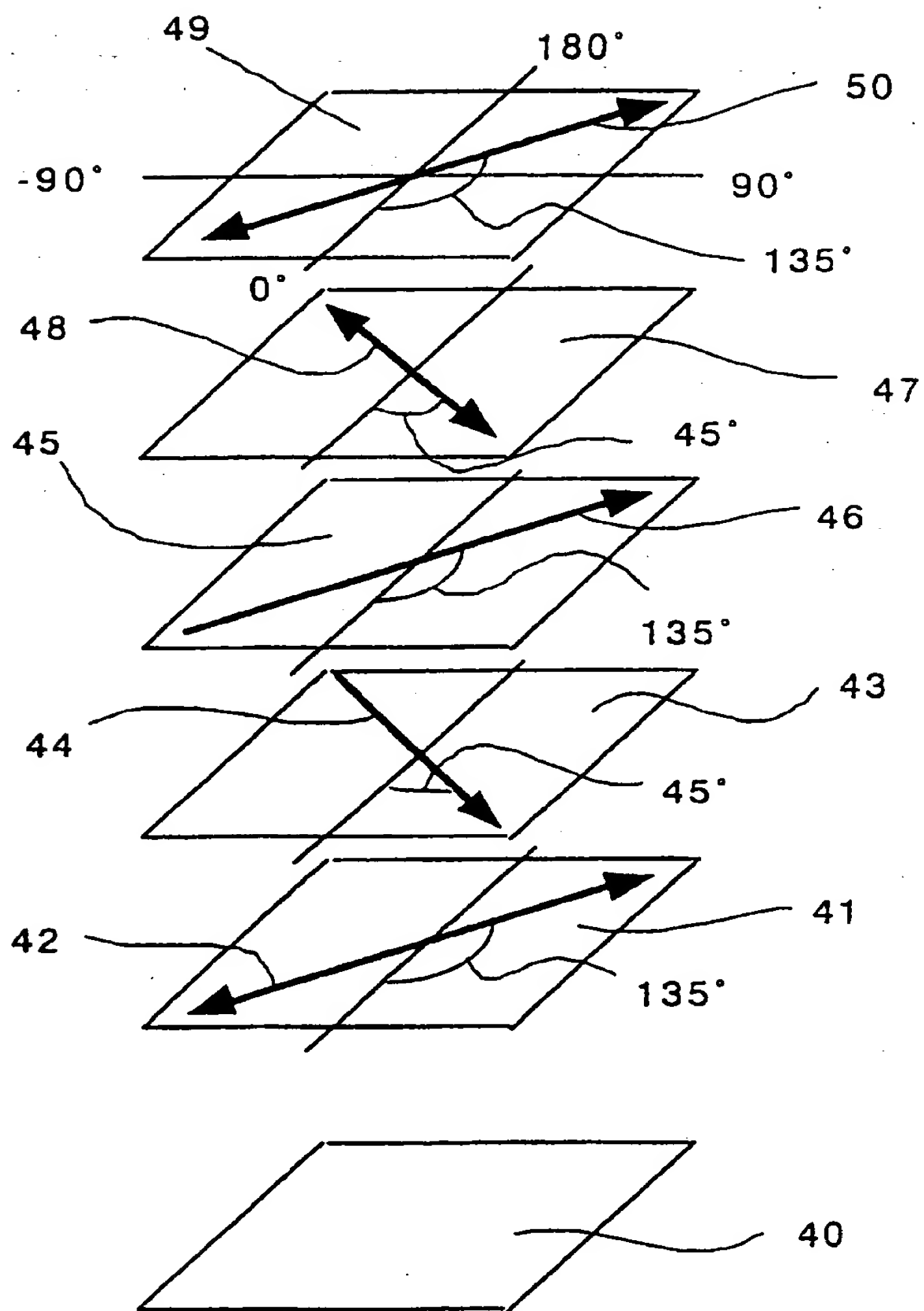
7/20

Fig. 7



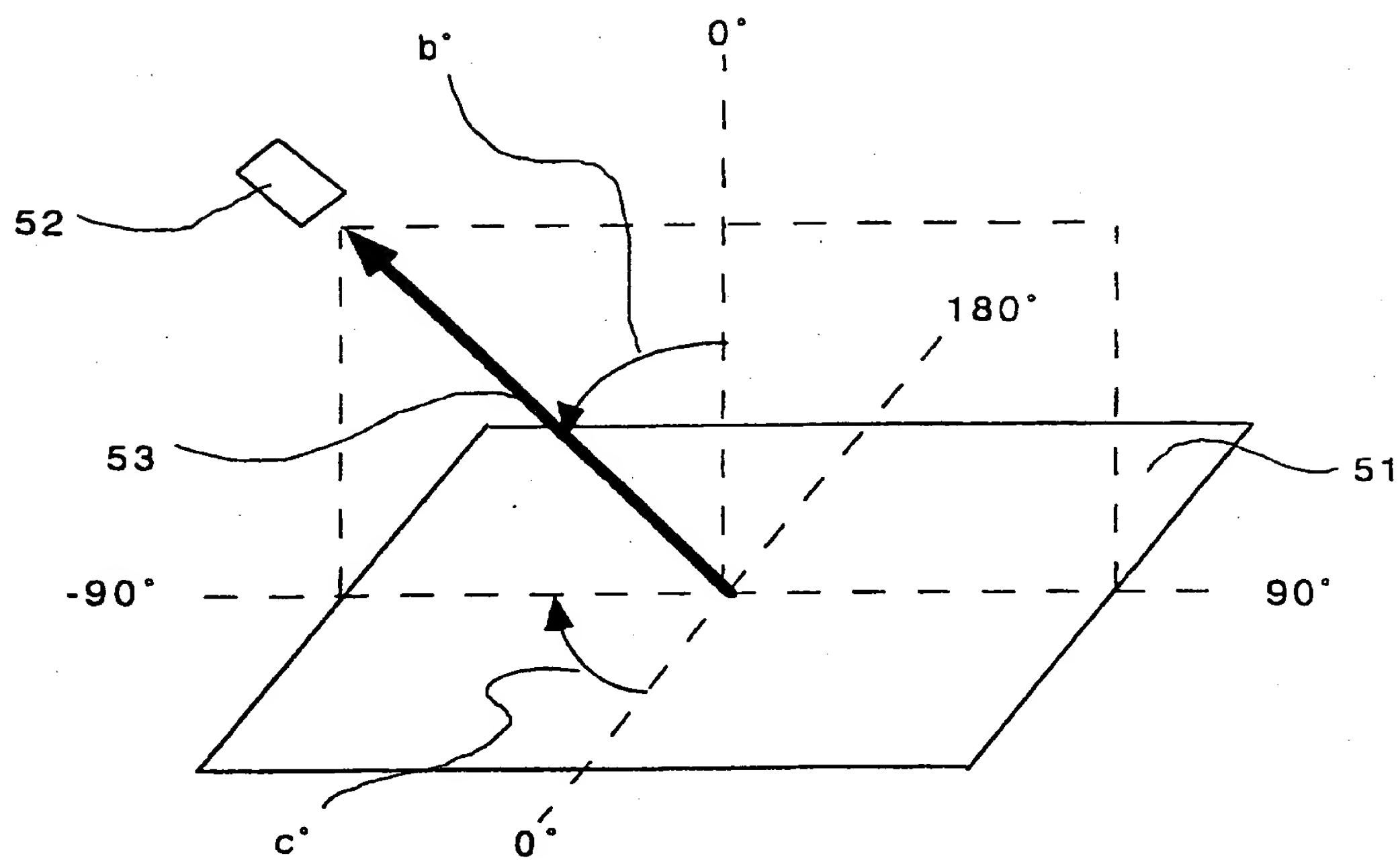
8/20

Fig. 8



9/20

Fig. 9



10 / 20

Fig. 10

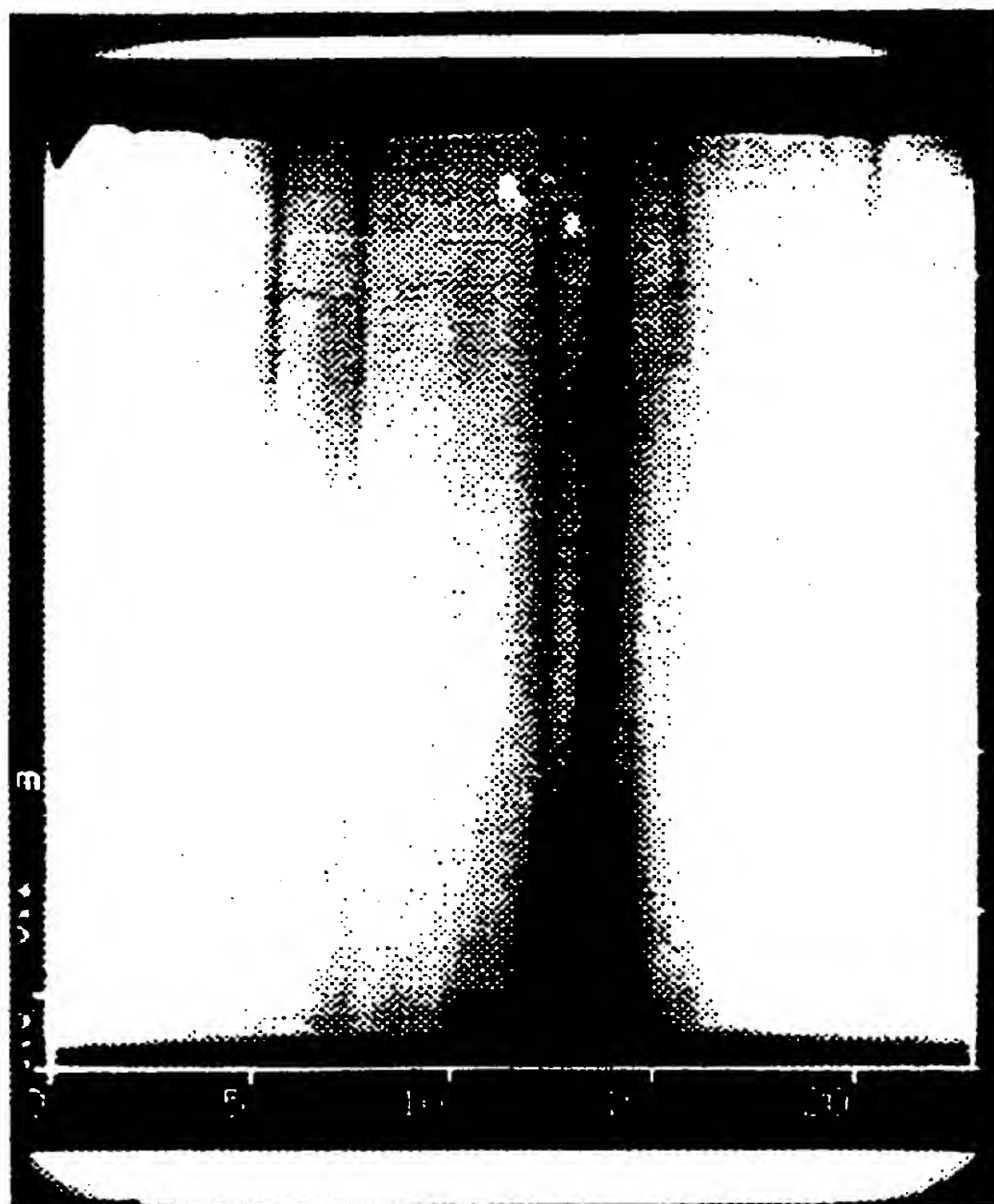


Fig. 11

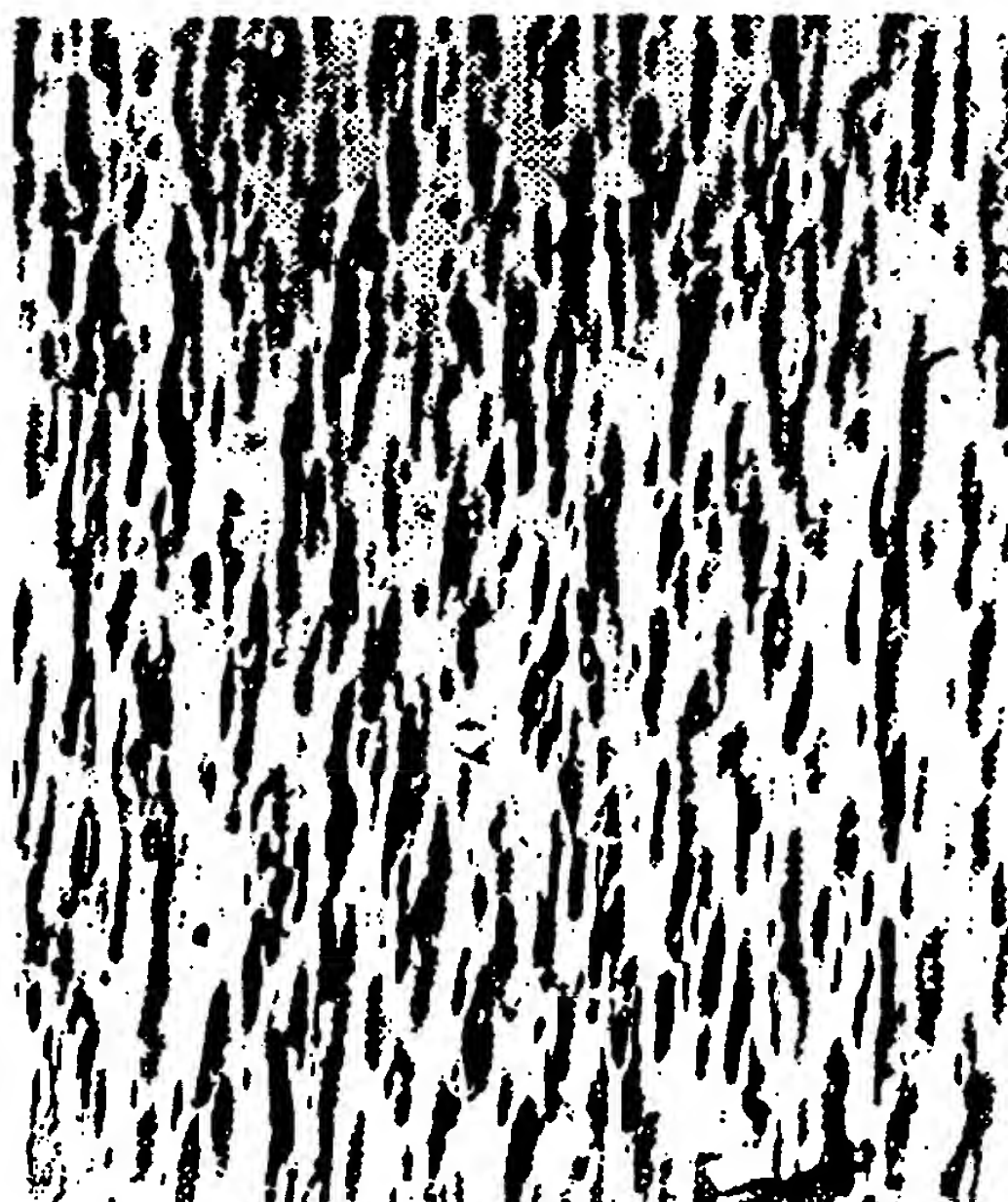


11/20

Fig. 12



Fig. 13





12/20

Fig. 14

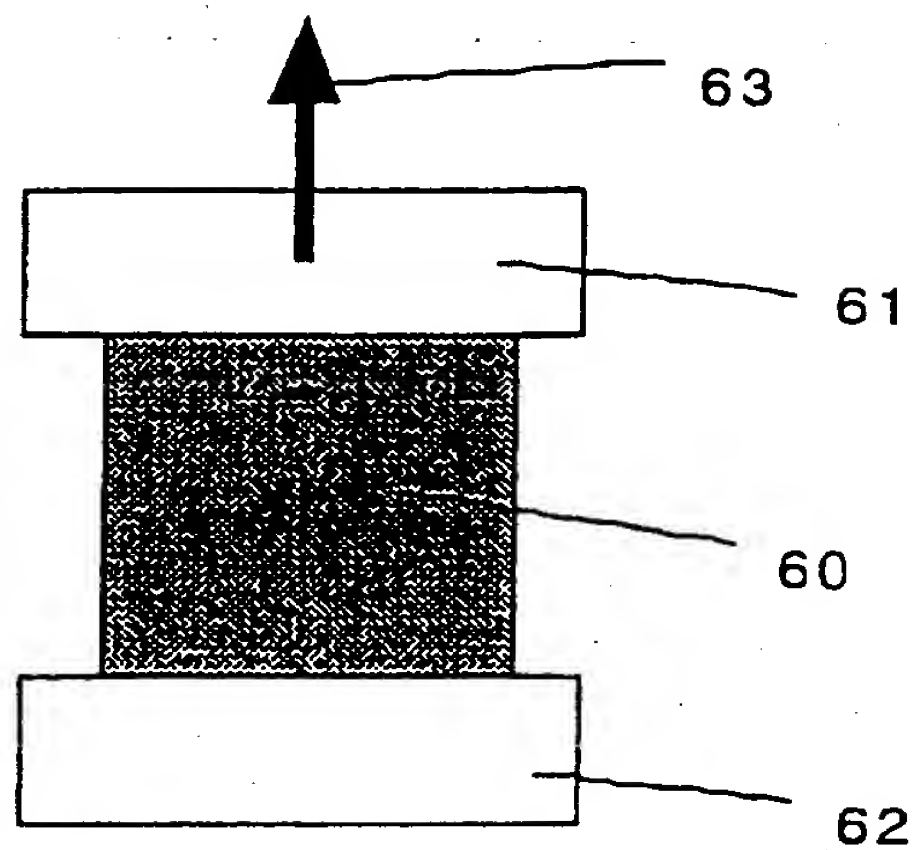
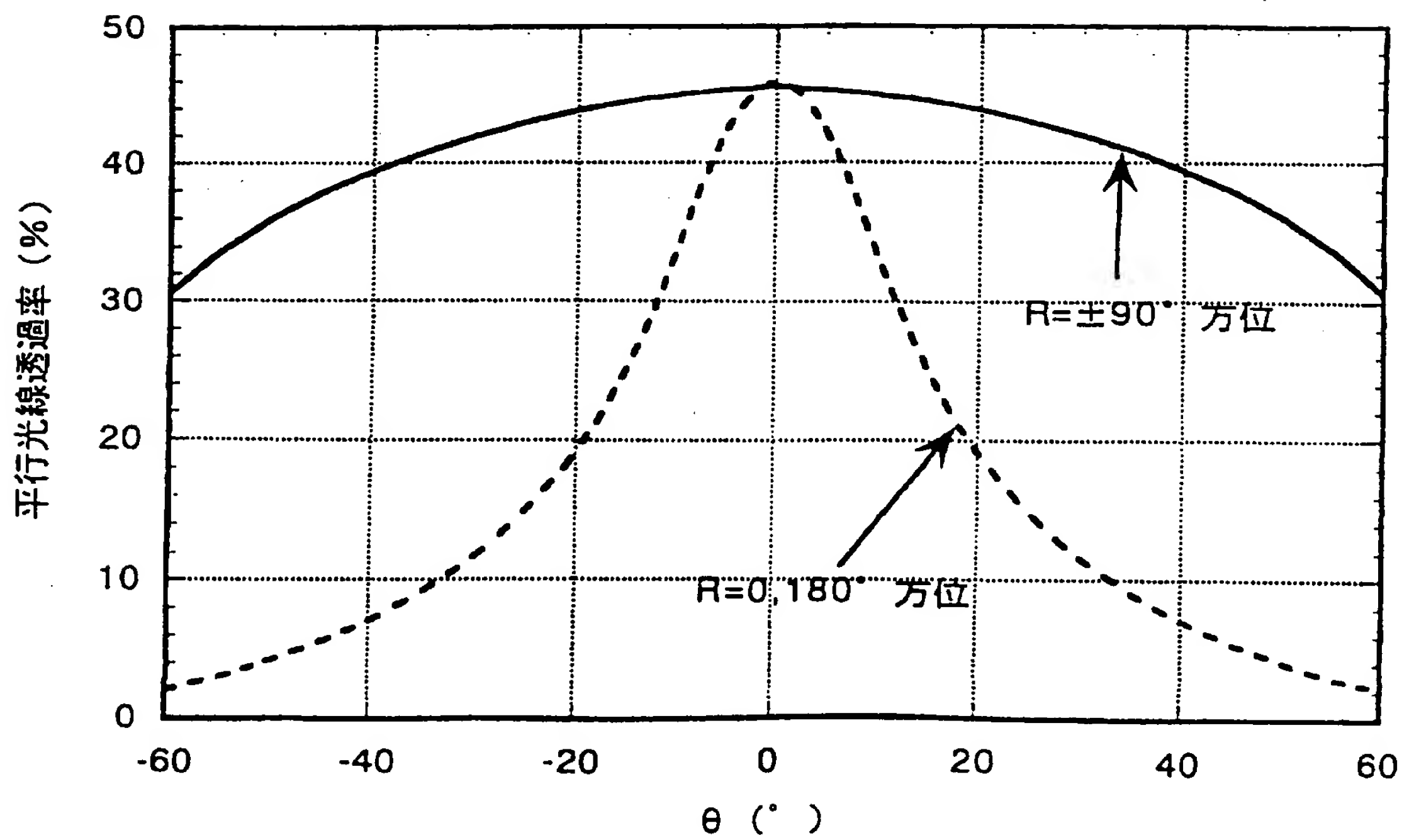
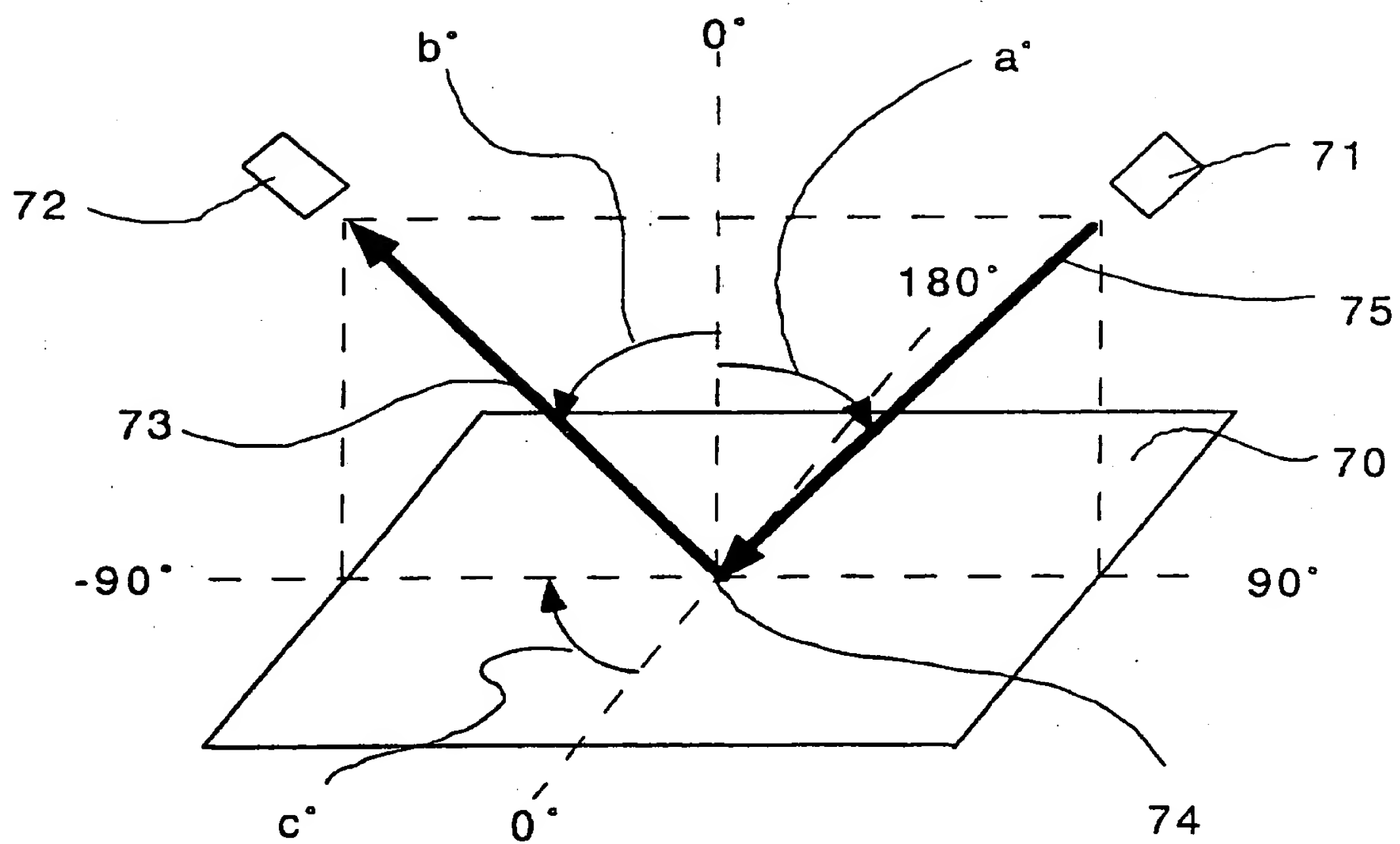


Fig. 15



13/20

Fig. 16



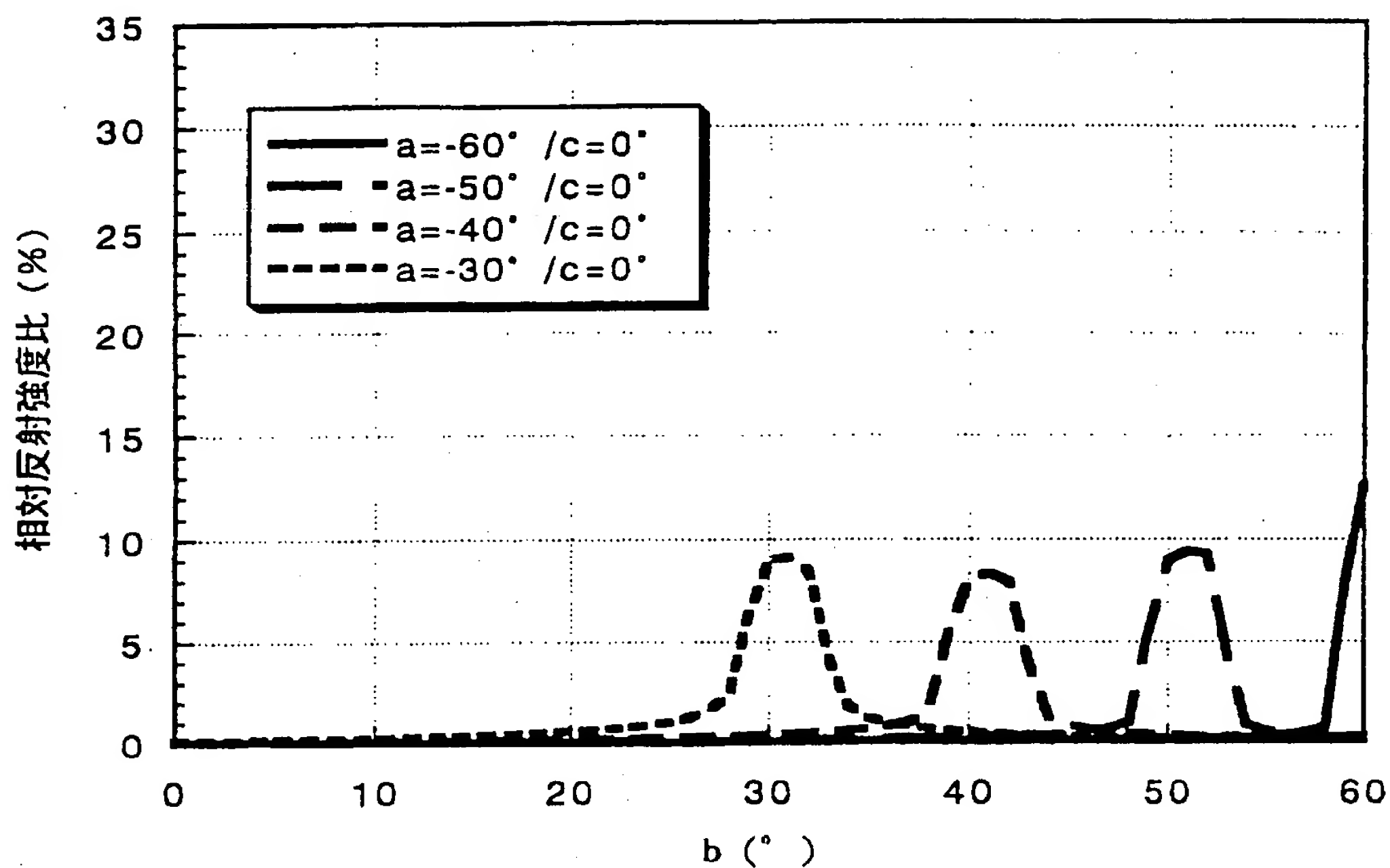
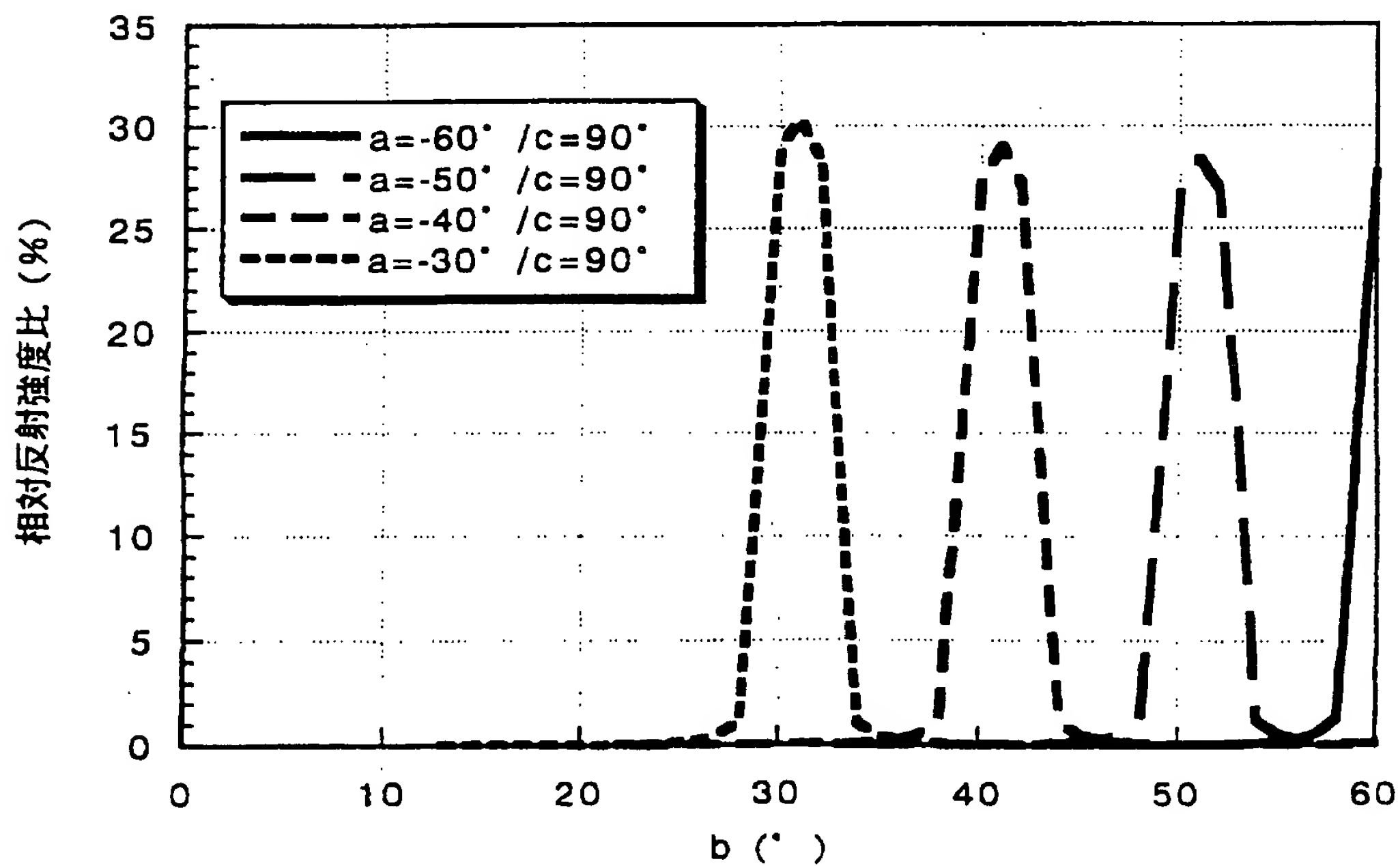
14/20  
Fig. 17

Fig. 18



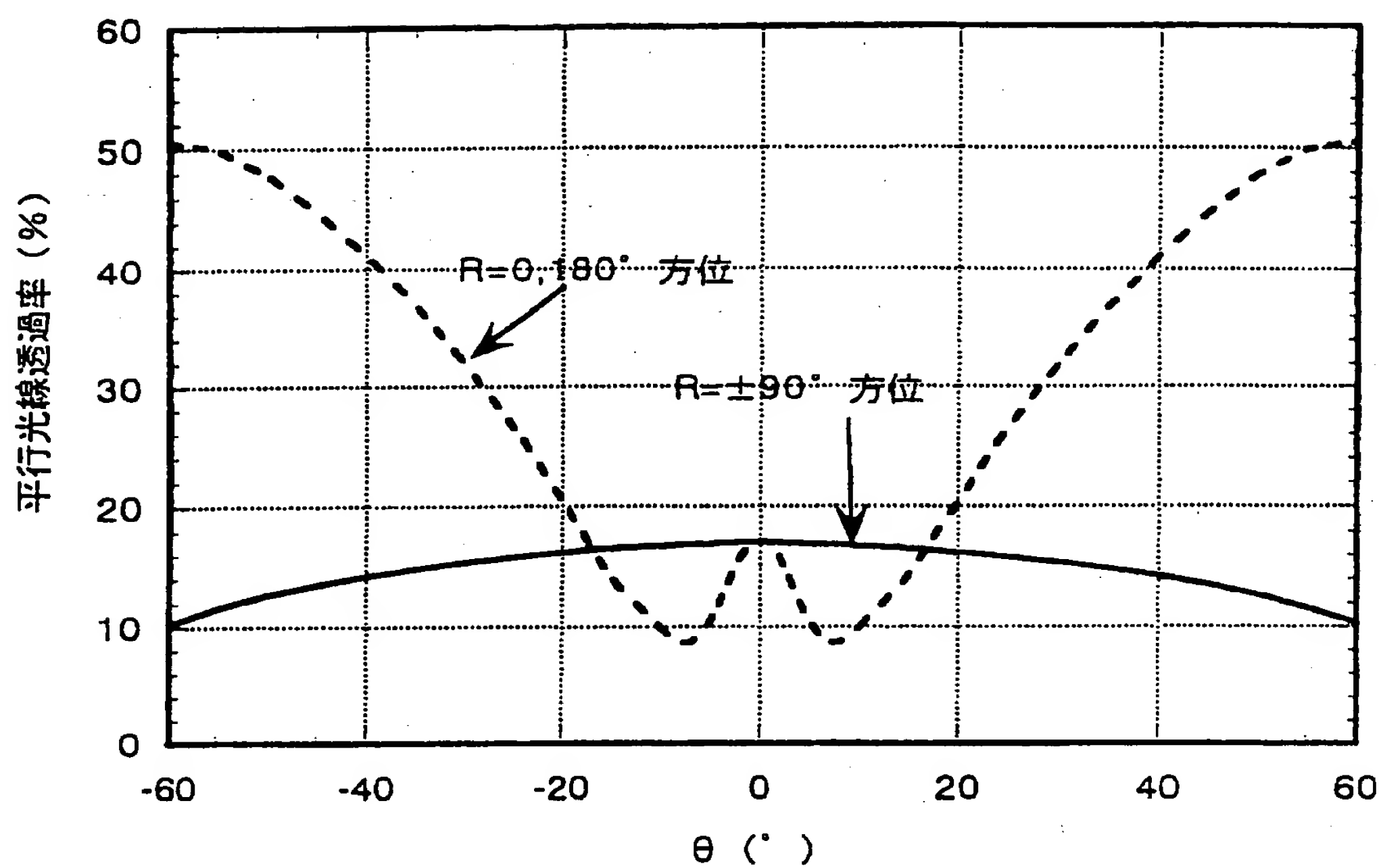
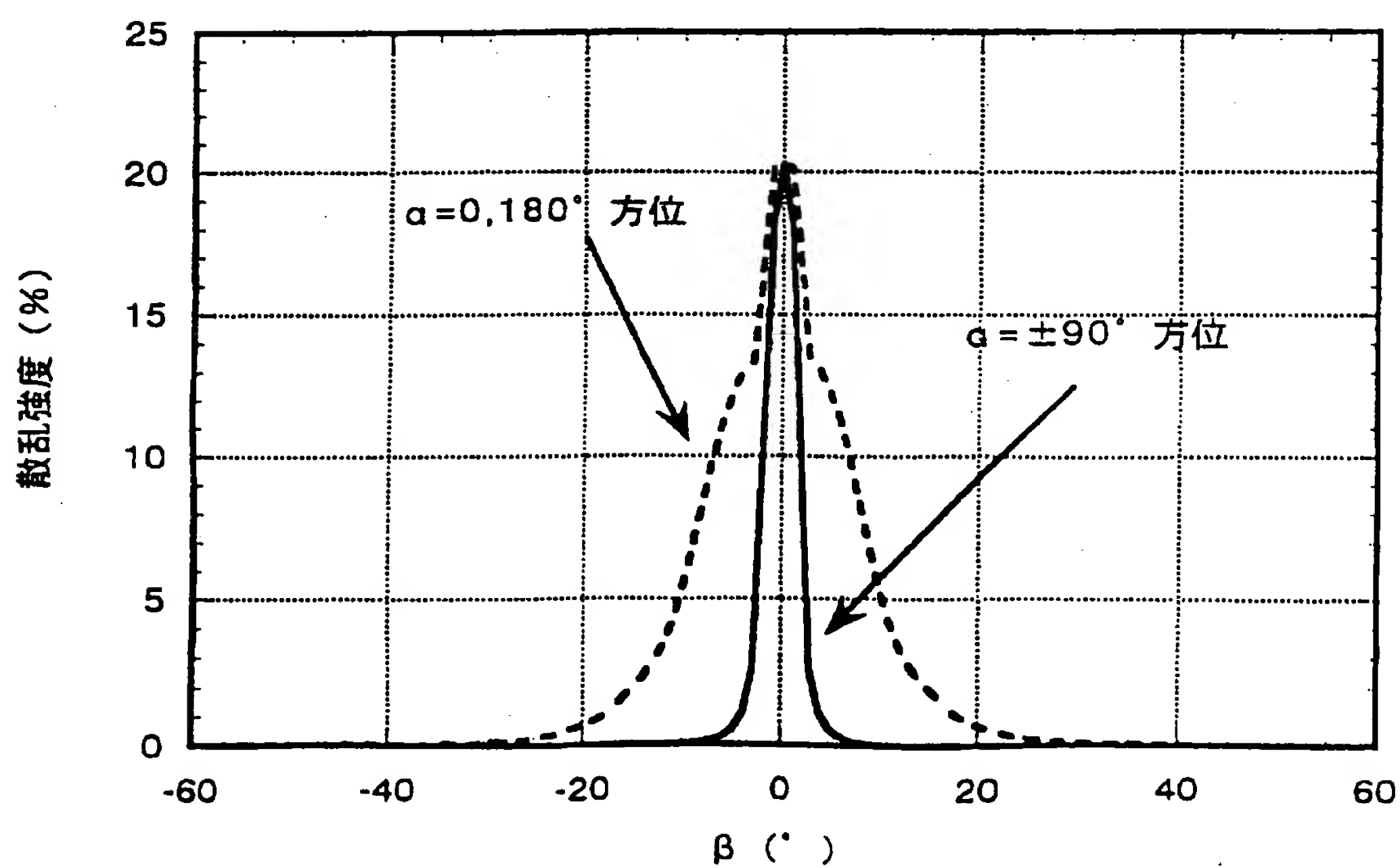
15/20  
Fig. 19

Fig. 20



16/20

Fig. 21

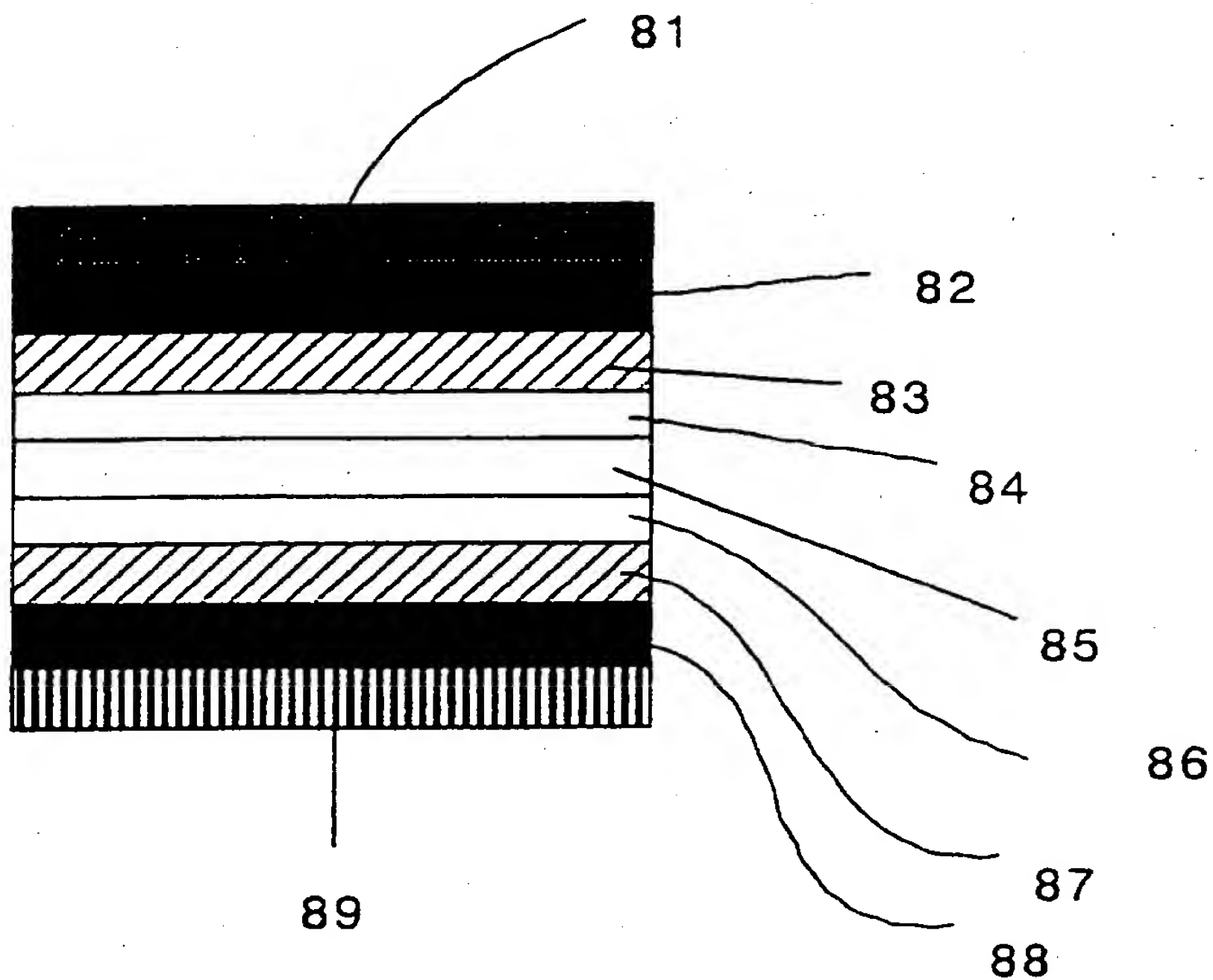
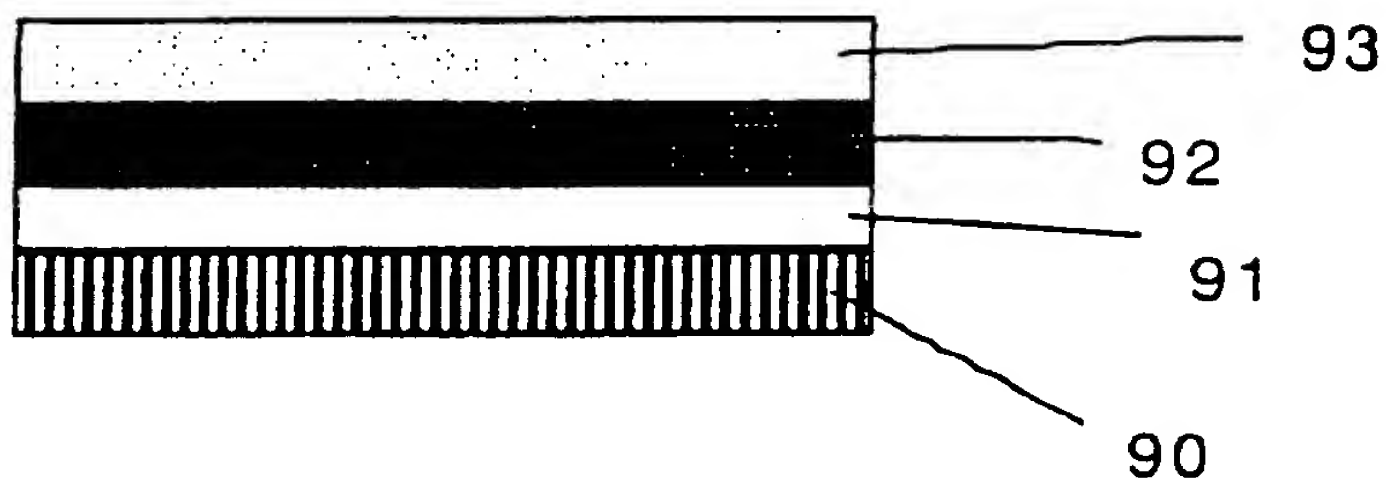
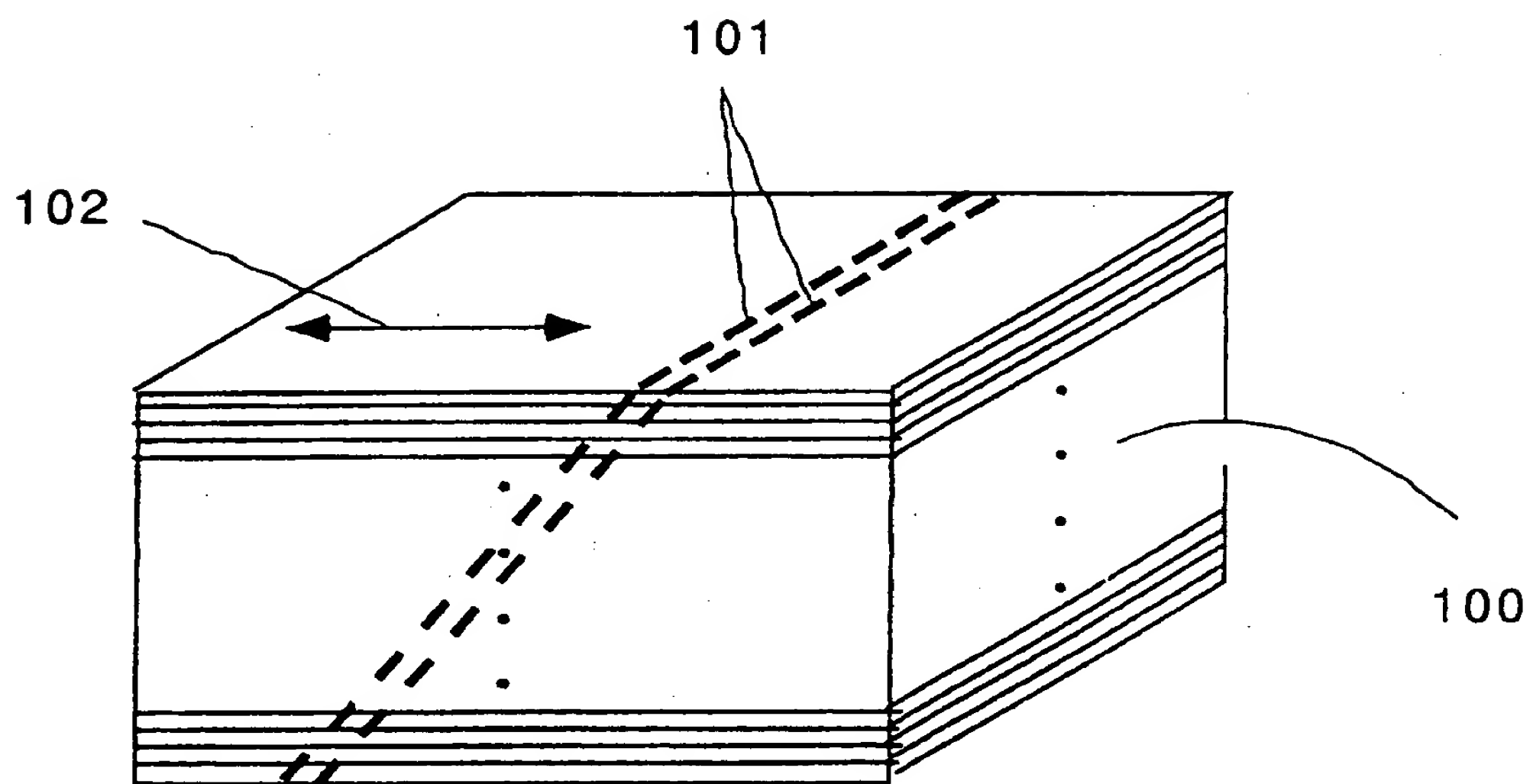


Fig. 22



17/20

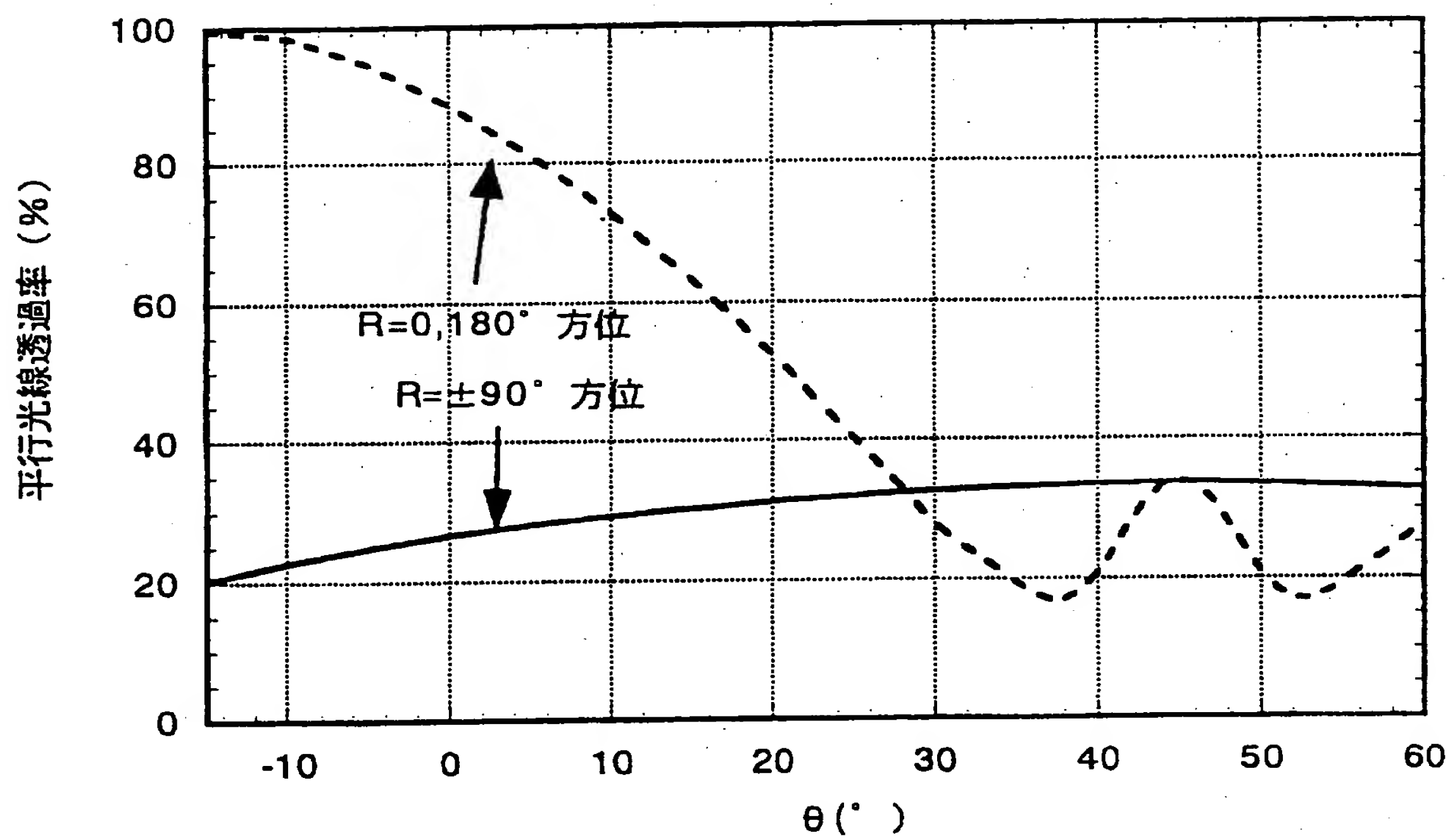
Fig. 23





18/20

Fig. 24



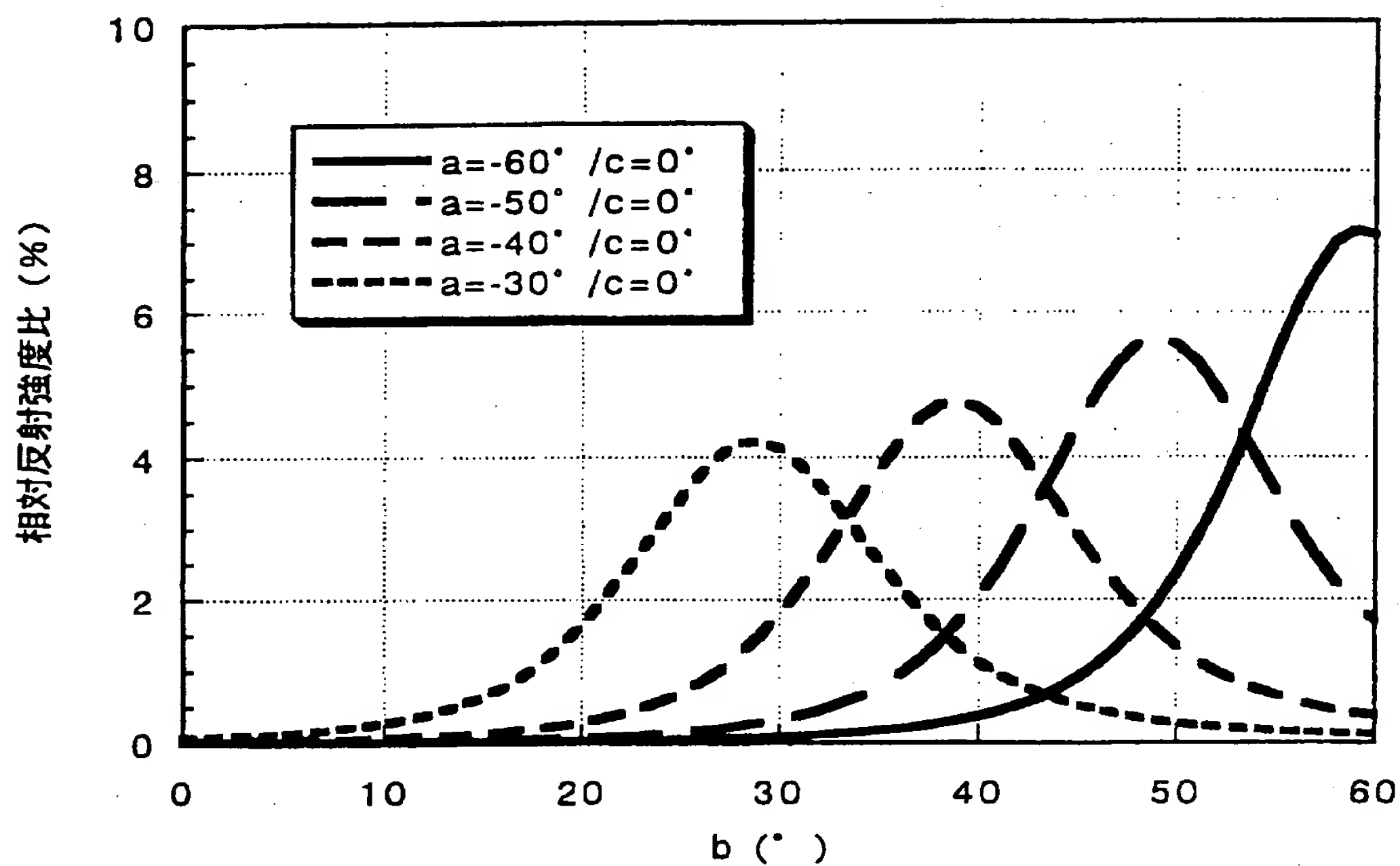
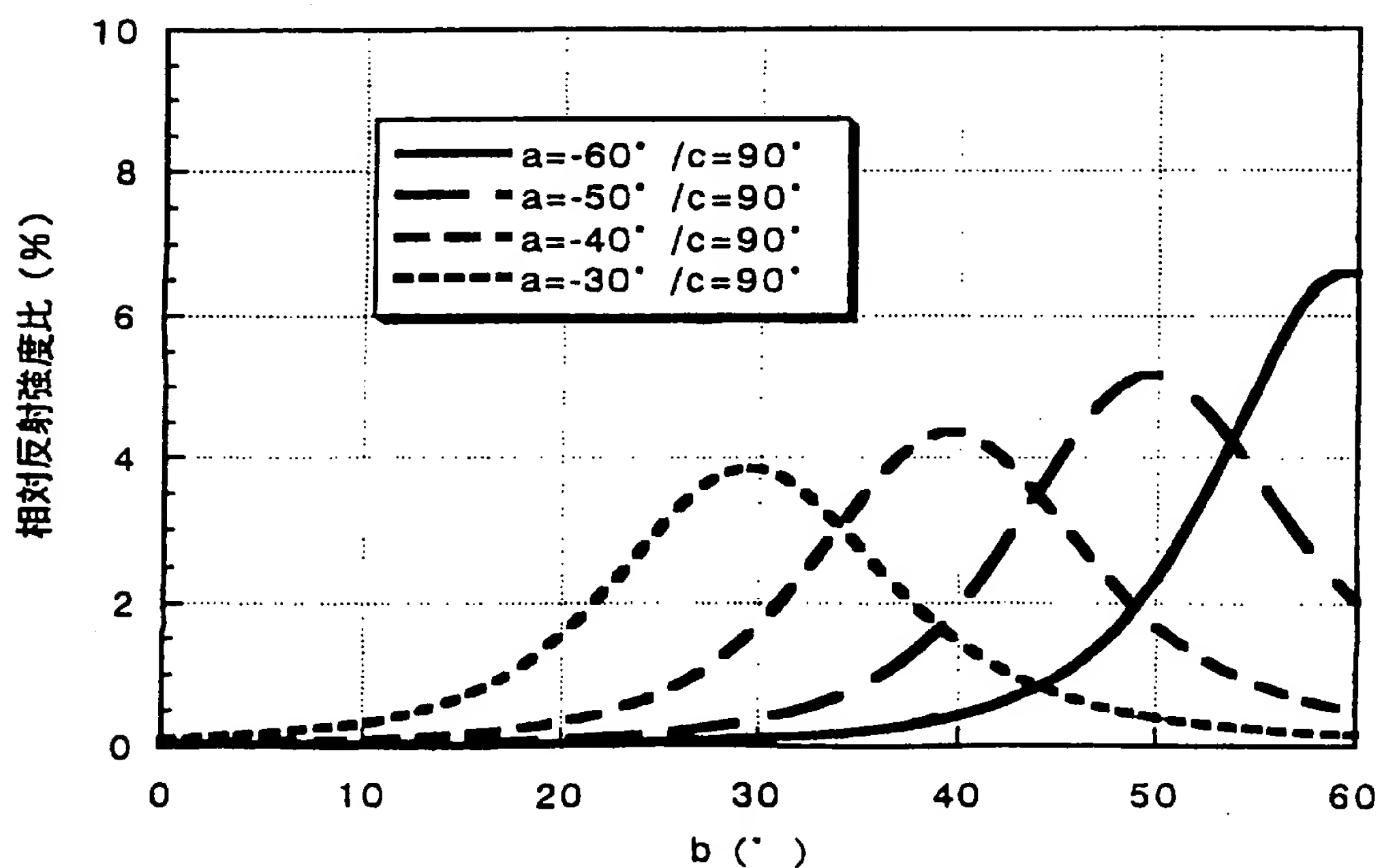
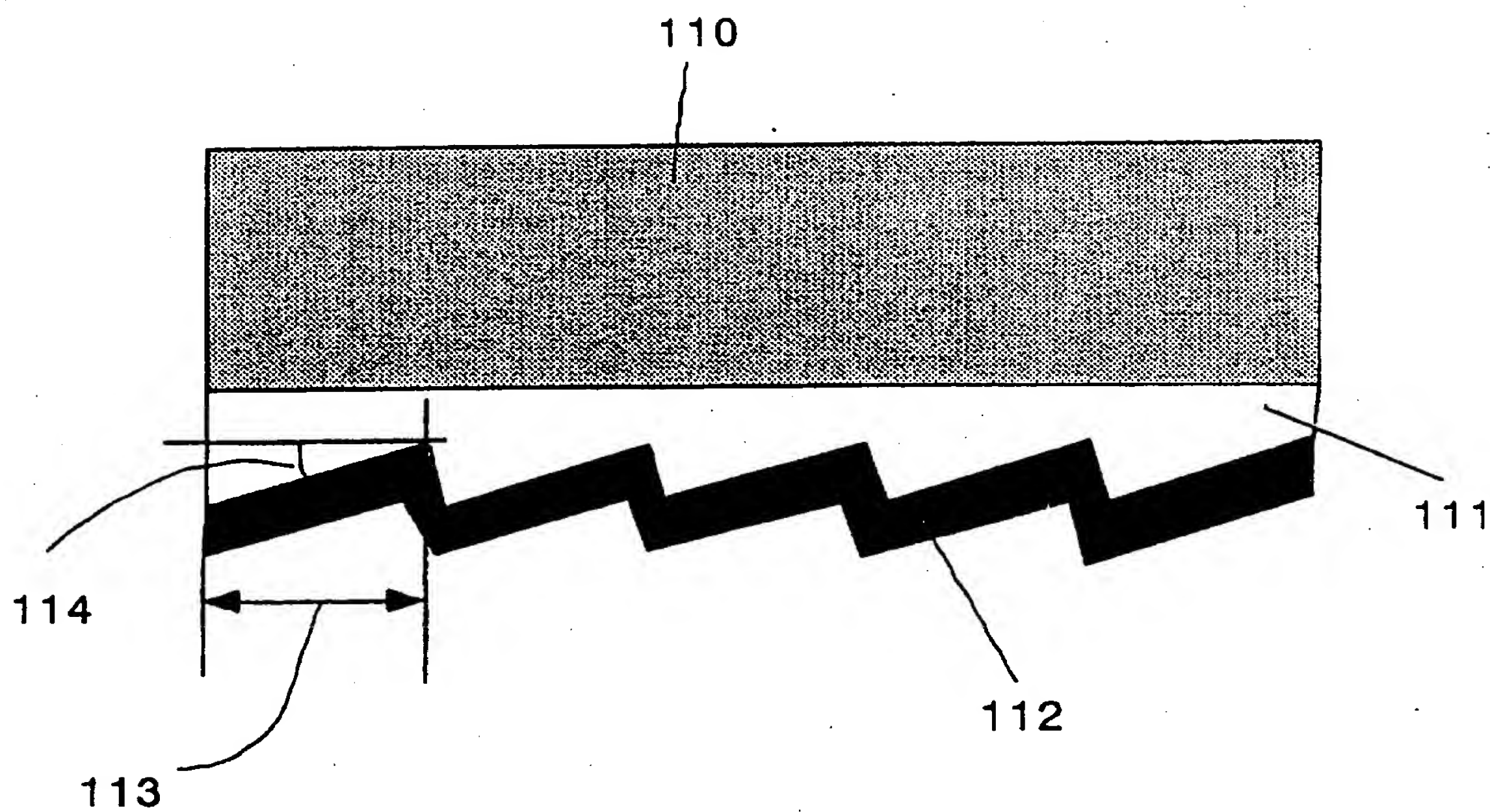
19/20  
Fig. 25

Fig. 26



20 / 20

Fig. 27



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/02700

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl<sup>6</sup> G02B5/02, G02B5/30, G02F1/1335, C08J9/00, B32B17/10,  
B32B7/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl<sup>6</sup> G02B5/02, G02F1/1335, C09J9/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926 - 1997
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971 - 1997
Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994 - 1997

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 8-160206, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), June 21, 1996 (21. 06. 96) (Family: none)	1 7-12, 19-20, 22-24, 26-29
P	JP, 8-262208, A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), October 11, 1996 (11. 10. 96) & EP, 724181, A2 & SG, 38923, A1	1-2, 13-18
A	JP, 6-298957, A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), October 25, 1994 (25. 10. 94) (Family: none)	1-2, 13-18
A	JP, 4-296819, A (Toray Industries, Inc.), October 21, 1992 (21. 10. 92) & EP, 496323, A2 & CA, 2059732 & DE, 69219371 & EP, 496323, B1	1-2, 13-18
A	JP, 7-209637, A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), August 11, 1995 (11. 08. 95) (Family: none)	22
A	JP, 59-81625, A (Canon Inc.), May 11, 1984 (11. 05. 84) (Family: none)	10-12, 20

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

October 27, 1997 (27. 10. 97)

Date of mailing of the international search report

November 5, 1997 (05. 11. 97)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/02700

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 8-76112, A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), March 22, 1996 (22. 03. 96) (Family: none)	10-12, 20
A	JP, 7-104127, A (Toppan Printing Co., Ltd.), April 21, 1995 (21. 04. 95) (Family: none)	12, 22-23
A	JP, 7-104272, A (Toppan Printing Co., Ltd.), April 21, 1995 (21. 04. 95) (Family: none)	12, 22-23
P	JP, 9-127501, A (Hitachi, Ltd.), May 16, 1997 (16. 05. 97) (Family: none)	10-11, 20-21
A	JP, 8-87009, A (Hitachi, Ltd.), April 2, 1996 (02. 04. 96) (Family: none)	10-11, 20-21

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>°</sup> G02B5/02, G02B5/30, G02F1/1335, C08J9/00  
B32B17/10, B32B7/02

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>°</sup> G02B5/02, G02F1/1335, C09J9/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1997年

日本国公開実用新案公報 1971-1997年

日本国登録実用新案公報 1994-1997年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 8-160206, A (積水化学工業株式会社), 21. 6月, 1996 (21. 06. 96) (ファミリーなし)	1 7-12, 19-20, 22-24 26-29
P	JP, 8-262208, A (三井東圧化学株式会社), 11. 10月, 1996 (11. 10. 96) & EP, 724181, A2 & SG, 38923, A1	1-2, 13-18
A	JP, 6-298957, A (三井東圧化学株式会社), 25. 10月, 1994 (25. 10. 94) (ファミリーなし)	1-2, 13-18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 10. 97

国際調査報告の発送日

05.11.97

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森内 正明

印

2H

9222

電話番号 03-3581-1101 内線 3231

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 4-296819, A (東レ株式会社), 21. 10月. 1992 (21. 10. 92) & EP, 496323, A2 & CA, 2059732 & DE 69219371 & EP 496323 & B1	1-2, 13-18
A	J P, 7-209637, A (住友化学工業株式会社), 11. 8月. 1995 (11. 08. 95) (ファミリーなし)	22
A	J P, 59-81625, A (キャノン株式会社), 11. 5月. 1984 (11. 05. 84) (ファミリーなし)	10-12, 20
A	J P, 8-76112, A (三井東圧化学株式会社), 22. 3月. 1996 (22. 03. 96) (ファミリーなし)	10-12, 20
A	J P, 7-104127, A (凸版印刷株式会社), 21. 4月. 1995 (21. 04. 95) (ファミリーなし)	12, 22-23
A	J P, 7-104272, A (凸版印刷株式会社), 21. 4月. 1995 (21. 04. 95) (ファミリーなし)	12, 22-23
P	J P, 9-127501, A (株式会社日立製作所), 16. 5月. 1997 (16. 05. 97) (ファミリーなし)	10-11, 20-21
A	J P, 8-87009, A (株式会社日立製作所), 2. 4月. 1996 (02. 04. 96) (ファミリーなし)	10-11, 20-21